

XAuBi (X=Eu, Ba) 拓扑 nodal chain 半金属的第一性原理研究^{*}

田心, 王广涛[†]

河南师范大学物理与材料科学学院, 新乡 453007

收稿日期: 2019-02-28; 接收日期: 2019-04-10

【摘要】 由于在磁性材料体系中缺失时间反演对称性, 导致 nodal chain 被破坏, 所以 nodal chain 通常存在于非金属材料中. 但是, 磁性材料 EuAuBi 与常规磁性材料不同. 本工作以第一性原理计算为研究方法, 预言了在不考虑自旋轨道相互作用时, 磁性材料 EuAuBi 体系为新型拓扑 nodal chain 半金属; 当考虑自旋轨道耦合时, EuAuBi 会退化为外尔半金属. 对于非磁材料 BaAuBi 来说, 在不考虑自旋轨道相互作用时, 它同样是一种拓扑 nodal chain 半金属; 当考虑自旋轨道相互作用时, 由于 C_3 旋转对称性的存在, BaAuBi 会退化为狄拉克半金属. 在 XAuBi (X=Eu, Ba) 中发现 nodal chain 半金属, 会促进对六角材料的拓扑性质研究以及开拓其新实际应用领域.

关键词: BaAuBi, EuAuBi, 拓扑 nodal chain 半金属, 反铁磁

PACS: 71.15.Mb, 73.20.At, 71.55.Ak

DOI: 10.13380/j.ltpl.2019.03.010

Investigation of Topological Nodal Chain Semimetals in XAuBi (X=Eu, Ba) by the First Principles Calculations

TIAN Xin, WANG Guangtao

College of Physics and Materials Science, Henan Normal University, X inxiang 453007

Received date: 2019-02-28; accepted date: 2019-04-10

【Abstract】 The nodal chain usually exists in the non-magnetic materials, because that the lack of the time reversal symmetry in the magnetic materials tends to kill the nodal chain. However, EuAuBi is an exception, existing nodal chain in the antiferromagnetic state. Based on first-principle calculations, we propose that EuAuBi is a topological nodal chain semimetal (NCSM), in absence of spin orbital coupling (SOC). Whereas, in the presence of SOC, it is a weyl semimetal. For nonmagnetic compound of BaAuBi, it is also a NCSM ignoring SOC. Nonetheless, BaAuBi is a Dirac semimetal due to the crystal symmetry, considering SOC. The discovery of the NCSM phase in XAuBi (X=Eu, Ba) would promote further research on the topological properties of hexagonal materials and develop its new practical applications.

Keywords: BaAuBi, EuAuBi, Topological nodal chain semimetals, Anti-ferromagnetism

PACS: 71.15.Mb, 73.20.At, 71.55.Ak

DOI: 10.13380/j.ltpl.2019.03.010

Reference method: TIAN Xin, WANG Guangtao, Low. Temp. Phys. Lett. **41**,0216 (2019)

^{*} 河南省自然科学基金(编号 182300410176), 本工作得到河南师范大学高性能计算中心(HPC)资助的课题.

[†] wangtao@htu.cn

1 引言

自从拓扑绝缘体^[1-5]在实验和理论中被发现以来,物质状态的研究已经成为凝聚态物理中的主要研究方向之一. 拓扑绝缘体的特征是体态为绝缘体,而表面呈现为金属态. 但是,目前凝聚态物理的研究方向逐渐转向于拓扑半金属^[6-12]. 与拓扑绝缘体的体能带不同,在拓扑半金属的体能带中,导带和价带在费米能级处存在交点,也就是无能隙点^[13-16]. 如果交点所属的两条带属于不同的不可约表示,那么他们之间的杂化严格为零. 因此,交叉点并不是偶然出现的,而是受对称性保护的交点. 在三维布里渊区中,由于对称性的差异,这些交叉点会形成很多不同的 nodal 结构,比如:(i) nodal line^[17],能带中的交叉点在三维布里渊区中形成一条闭合曲线;(ii) nodal link^[18,19],交叉点形成两条连在一起的闭合曲线;(iii) nodal chain^[20-22],有两条以上的闭合曲线在三维布里渊区中形成链;(iv) nodal net^[23-25],有两条以上的链在布里渊区中形成网状结构. 以上所有结构的材料都被称为 nodal line 半金属^[24-28]. 基于 nodal line 的能带结构,nodal line 半金属具有许多新颖的物理性质,比如受拓扑保护的鼓状表面态^[29]、表面 Friedel 震荡^[30]以及霍尔效应^[31-35].

当时间反演对称性和空间反演对称性同时存在时,由于自旋轨道相互作用而使 nodal chain 形成离散点被称为狄拉克点^[36-38]. 若时间反演对称性和空间反演对称性破缺,狄拉克点则会退简并,形成外尔点. 因此,nodal chain 半金属可以被看作是寻找其他两类半金属(狄拉克半金属和外尔半金属)的起点. 目前,理论计算已经提出了许多 nodal chain 半金属的材料,包括全碳 Mackay-Terrones 晶体^[27]、超蜂窝晶格^[39]和黑磷^[40]等等.

在本工作中,我们基于第一性原理对 EuAuBi 和 BaAuBi 两种材料的拓扑性质进行研究. 这两种化合物都是通过传统固态反应合成的^[41],在第一性原理计算过程中可以忽略其稳定性影响. 第一性原理计算的结果表明:在不考虑自旋轨道相互作用时, EuAuBi 是第一个被发现的反铁磁 nodal chain 半金属, BaAuBi 也是一种 nodal chain 半金属;在考虑自旋轨道耦合时, EuAuBi 是外尔半金属, BaAuBi 是一个狄拉克半金属.

2 晶格结构和计算方法

图一为 EuAuBi 和 BaAuBi 的布里渊区和晶体结构示意图. 他们的布里渊区与其沿 $\langle 001 \rangle$ 和 $\langle 010 \rangle$ 的投影面如图 1(a)所示. EuAuBi 和 BaAuBi 具有相同的六角晶体结构,但属于不同的空间群. 图 1(b)和(c)中给出 EuAuBi 和 BaAuBi 的晶格结构. 对于反铁磁材料 EuAuBi,晶格常数 $a=b=4.799 \text{ \AA}$, $c=8.295 \text{ \AA}$,空间群为 P63mc. 对于非磁材料 BaAuBi 的晶格常数 $a=b=4.886 \text{ \AA}$, $c=9.241 \text{ \AA}$,空间群为 P63/mmc. BaAuBi 单胞中有两个化学式单元, Ba、Au 和 Bi 原子分别位于 $(0,0,0)$, $(1/3, 2/3, 1/4)$ 和 $(1/3, 2/3, 3/4)$. EuAuBi 单胞与 BaAuBi 单胞类似,也包含两个化学式单元, Eu、Au 和 Bi 原子分别位于 $(0,0,0.25)$, $(1/3, 2/3, 0.062)$ 和 $(1/3, 2/3, 0.447)$.

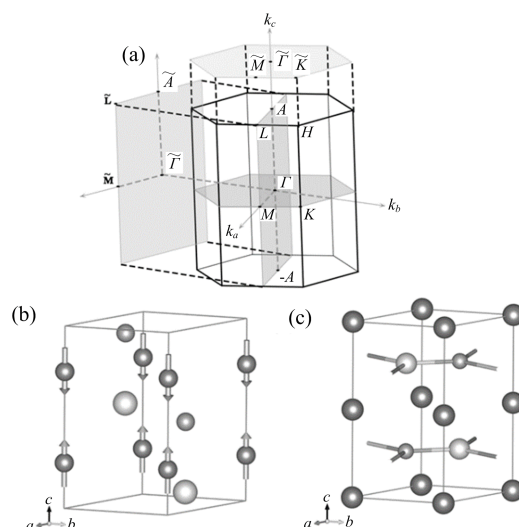


图 1 (a) EuAuBi 和 BaAuBi 的三维布里渊区及其在 (001) , (010) 两个投影面的二维布里渊区; (b) EuAuBi 和(c) BaAuBi 的晶格结构

本工作中使用的是基于密度泛函理论的第一性原理方法. 计算过程使用维也纳 VASP 软件包^[42], 结构优化计算中交换关联式采用 Perdew-Burke-Ernzerhof (PBE) 广义梯度近似(GGA)^[43,44], 平面波截断能选取为 500 eV, 能量收敛判据设定为 10^{-7} eV. 布里渊区的 k 点采用以 Γ 点为中心的 $12 \times 12 \times 9$ 网格. 本工作中使用 Wannier90 软件^[45,46]包得到 p-轨道的 Wannier 函数, 通过计算格林函数得到体系的投影表面态和费米面.

3 结果和讨论

3.1 在不考虑自旋轨道相互作用时: nodal chain 半金属

EuAuBi 和 BaAuBi 的能带结构如图 2(a) 和图 2(c) 所示. 在费米能级附近, 二者均展现为 nodal chain 半金属的能带结构. 低能量的状态主要来源于 Bi 原子的 p 轨道的成键态和反键态^[40]. 对于 EuAuBi (图 2(a)), 沿着 $L-\Gamma$ 和 $M-\Gamma$ 方向有两个无能隙点. Γ_1 能带主要由 Bi 原子的 p 轨道的成键态构成, 而 Γ_2 能带主要由 Bi 原子的 p 轨道的反键态构成, 这两条能带属于不同的不可约表示. 这就表明了两条能带之间的杂化严格为零, 即无能隙点是严格存在的, 并且受 C_2^z 对称性的保护. 如果对称性被破坏, 那么两条能带之间可能出现杂化, 从而打开带隙. 从图 2(a) 中可以看出, 在 A 点处有一个三重简并交叉点, 而且这个点并不是孤立的点. 通过使用 Wannier_Tools 软件包仔细搜索全布里渊区, 发现一个 nodal loop 存在于 Γ -M-A 平面. 因此, 考虑沿 k_z 方向的平移对称, 单个的 nodal line 在布里渊区中形成黄桃状 nodal chain, 如图 2(b) 中所示. 对于 BaAuBi (图 2(c)), 非磁结构保留了时间反演对称性, 使得它的晶格对称性不同于 EuAuBi. 与 EuAuBi 的能带组成类似, BaAuBi 低能态主要由 Bi 原子的 p 轨道的成键态和反键态构成. 无能隙点所属的两条能带分别属于不同的不可约表示, 并且具有符号相反的宇称. 负宇称 Γ_5^- 的能带主要有 Bi 原子 p 轨道的反键态组成, 而正宇称 Γ_6^+ 的能带主要由 p 轨道的反键态组成, 二者交点为拓扑非平庸交点, 并且造成能带翻转. 但是, 其能带翻转强度明显大于 EuAuBi 的能带翻转强度. 在图 2(c) 中, 在 A 点处同样存在一个无能隙点. 通过分析和计算, BaAuBi 中黄桃状 nodal chain 的形状和复杂性要比 EuAuBi 强得多, 如图 2(d) 中黑色线条所示.

非平庸的拓扑体能带通常是伴随着拓扑表面态而存在的. 在本工作中计算了 (010) 面的无能隙点, 如图 3 所示. 对于 EuAuBi, 在 (010) 面存在椭圆形的 nodal loop. 在二维布里渊区中可以观测到, nodal loop 存在于 $k_x k_z$ -面内. 为了观察 nodal chain 的存在以及它与体能带的链接, 我们通过迭代格林函数方法计算了 EuAuBi 半无限大系统的 (010) 投影面的表面态, 图 3(c) 所示. 沿着 $\tilde{X}-\tilde{\Gamma}-\tilde{U}$ 方向, 有三

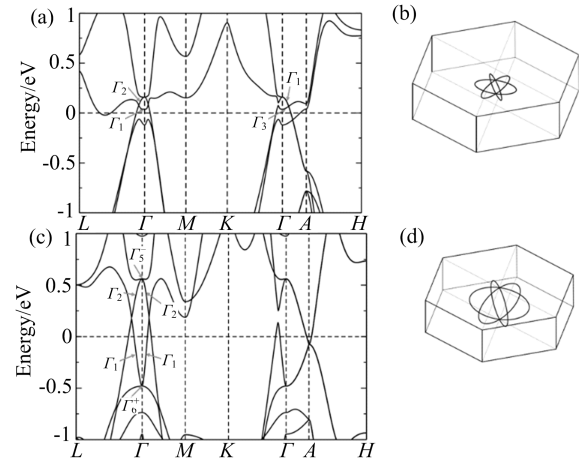


图 2 (a) BaAuBi 和 (c) EuAuBi 的能带结构. 图中标记的 $\Gamma_1, \Gamma_2, \Gamma_5, \Gamma_6^+$ 是交叉能带的不可约表示. 正负号表示这些交叉点能带在 Γ 点的宇称. (a) BaAuBi 和 (c) EuAuBi 的能带翻转强度分别为 $\Delta i = E(\Gamma_6^+) - E(\Gamma_5^-) = 1.04$ eV, $\Delta i = E(\Gamma_1) - E(\Gamma_2) = 0.12$ eV. 布里渊区中 (b) BaAuBi 和 (d) EuAuBi 黄桃状 nodal chain 示意图

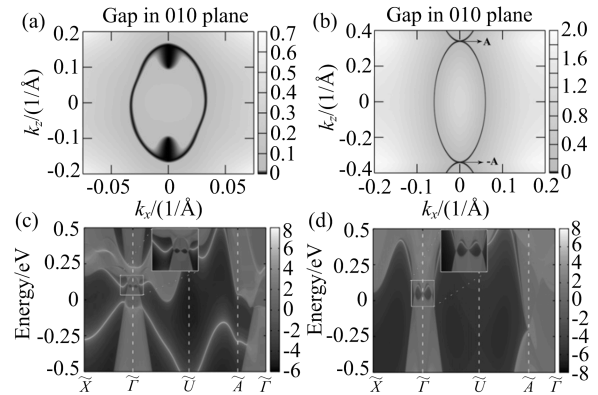


图 3 (a) BaAuBi 和 (b) EuAuBi 在 (010) $k_x k_z$ -面的无能隙点; (c) 和 (d) 分别为 BaAuBi 和 EuAuBi (010) 投影面的表面态, 插图为局部放大图

个无能隙的离散点, 并且被两条鼓状表面态相连. 这种鼓膜状的表面态可以看作是 nodal chain 的标志, 图 3(c) 中的插图给出了鼓膜状表面态的放大图. 对于 BaAuBi, 在 $k_x k_z$ -面仍然能观测到椭圆状的 nodal loop. 但是, 与 EuAuBi 不同, nodal loop 的顶端和低端均与另一个布里渊区中的 nodal loop 在 A 点接触, 如图 3(b) 中所示. 在图 3(d) 中, 依旧可以观察到在 $\tilde{\Gamma}$ 附近的鼓膜装表面态. 在图 (d) 中并不能观察到在能带结构中 A 点处的四重简并点, 这是由于表面态中的体能带将四重简并点覆盖所致. 到目前为

止,几乎所有的 nodal chain 半金属都是非磁材料. 我们在本工作中发现的 EuAuBi, 是第一个反铁磁 nodal chain 半金属.

3.2 考虑自旋轨道相互作用时: 狄拉克/外尔半金属

自旋轨道耦合可以使 nodal chain 打开能隙, 改变能带的拓扑性, 使得其退化为狄拉克半金属或者外尔半金属. 图 4 中给出了考虑自旋轨道耦合时 BaAuBi 的能带结构. 在考虑自旋轨道耦合时, L - Γ - M 方向的交叉点打开约为 0.13 eV 的带隙, 如图 4(b) 所示. 由于时间反演对称性和空间反演对称性的存在, A 点的四种简并点被保留, 如图 4(c) 所示. A 点处的狄拉克点被 C_3 旋转对称性保护, 因此这个狄拉克点并没有被自旋轨道相互作用破坏. 这些结果显示, BaAuBi 是一个接近理想型的狄拉克半金属, 与 Na_3Bi 类似.

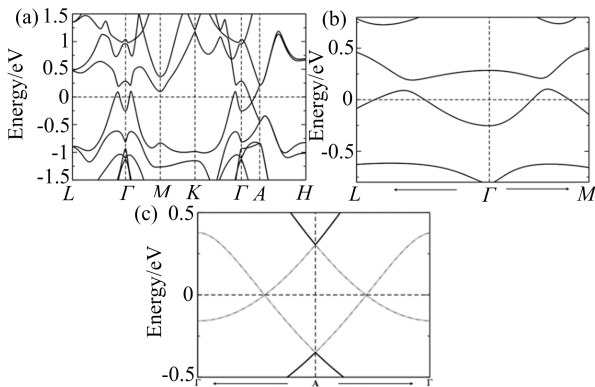


图 4 (a)考虑自旋轨道相互作用时 BaAuBi 的能带结构; (b) L - Γ - M 方向的能带结构放大图, Γ 点附近的两个零能隙点打开能隙; (c) Γ -A 方向的能带结构放大图, Γ -A 方向存在狄拉克点

在 EuAuBi 中, 由于反铁磁性的存在, 打破了时间反演对称性, A 点的简并性会劈裂, 狄拉克点将退简并为两个外尔点, 这点已经在 $\text{Eu}_{0.5}\text{Ba}_{0.5}\text{AgBi}$ 材料中被证实.

4 结 论

通过第一性原理, 在本工作中计算了三元化合物 XAuBi ($X=\text{Eu}, \text{Ba}$) 的能带结构、零能隙点以及表面态. 我们发现在不考虑自旋轨道相互作用时, EuAuBi 是反铁磁拓扑 nodal chain 半金属, 而 BaAuBi 是一个拓扑 nodal chain 半金属. Nodal chain 之所以能够在磁性材料 EuAuBi 中存在, 是因为受到了 C_3 旋转对称性的保护, 使其不被磁性破坏. 当考虑了自旋轨道耦合时, 若旋转对称性被保护而时间反演被破坏, XAuBi 体系将由狄拉克半金属退化为外尔半金属. 基于上述特点, 我们期待许多新颖的物理特性都能在这两种三元化合物中被观测到, 比如 Friedel 震荡、量子霍尔效应等.

参 考 文 献

- [1] J. Moore, *Nat. Phys.*, **5** (2009), 378
- [2] M. Z. Hasan, and C. L. Kane, *Rev. Mod. Phys.*, **82** (2010), 3045.
- [3] X. L. Qi, and S. C. Zhang, *Rev. Mod. Phys.* **83** (2011), 1057.
- [4] H. J. Zhang, C. X. Liu, X. L. Qi, X. Dai, Z. Fang and S. C. Zhang, *Nat. Phys.*, **5** (2009), 438.
- [5] L. Fu, C. L. Kane, and E. J. Mele, *Phys. Rev. Lett.*, **98** (2007), 106803.
- [6] X. G. Wan, A. Turner, A. Vishwanath, and S. Y. Savrasov, *Phys. Rev. B*, **83** (2011), 205101.
- [7] A. A. Burkov, and L. Balents, *Phys. Rev. Lett.*, **107** (2011), 127205.
- [8] G. Xu, H. M. Weng, Z. J. Wang, X. Dai, and Z. Fang, *Phys. Rev. Lett.*, **107** (2011), 186806.
- [9] H. M. Weng, C. Fang, Z. Fang, B. Andrei Bernevig, and X. Dai, *Phys. Rev. X*, **5** (2015), 011029.
- [10] B. Singh, A. Sharma, H. Lin, M. Z. Hasan, R. Prasad, and A. Bansil, *Phys. Rev. B*, **86** (2012), 115208.
- [11] L. Lu, Z. Y. Wang, D. X. Ye, L. X. Ran, L. Fu, J. D. Joannopoulos, and M. Soljacic, *Science*, **349** (2015), 622.
- [12] B. Q. Lv, H. M. Weng, B. B. Fu, X. P. Wang, H. Miao,

- J. Ma, P. Richard, X. C. Huang, L. X. Zhao, G. F. Chen, Z. Fang, X. Dai, T. Qian, and H. Ding, *Phys. Rev. X*, **5** (2015), 031013.
- [13] D. J. Thouless, M. Kohmoto, M. P. Nightingale, and M. den Nijs, *Phys. Rev. Lett.*, **49** (1982), 405.
- [14] Q. Niu, D. J. Thouless, and Y.-S. Wu, *Phys. Rev. B*, **31** (1985), 3372.
- [15] C. L. Kane and E. J. Mele, *Phys. Rev. Lett.*, **95** (2005), 146802.
- [16] Z. Wang and S.-C. Zhang, *Phys. Rev. X*, **2** (2012), 031008.
- [17] Z. B Yan, R. Bi, H. T. Shen, L. Lu, S.-C. Zhang, and Z. Wang, *Phys. Rev. B*, **96** (2017), 041103.
- [18] W. Chen, H. -Z. Lu and J.-M. Hou, *Phys. Rev. B*, **96** (2017), 041102(R).
- [19] B. Lian, C. Vafa, F. Vafa, and S. C. Zhang, *Phys. Rev. B*, **95** (2017), 094512.
- [20] D. T. Son and B. Z. Spivak, *Phys. Rev. B*, **88** (2013), 104412.
- [21] T. Bzdusek, Q. Wu, A. Regg, M. Sigrist, and A. A. Soluyanov, *Nature (London)*, **538** (2016), 75.
- [22] G. Q. Chang, S.-Y. Xu, X. T. Zhou, S.-M. Huang, B. Singh, B. K. Wang, I. Belopolski, J. X. Yin, S. T. Zhang, A. Bansil, H. Lin, and M. Z. Hasan, *Phys. Rev. Lett.*, **119** (2017), 156401.
- [23] J.-T. Wang, S. Nie, H. M. Weng, Y. Kawazoe, and C. F. Chen, *Phys. Rev. Lett.*, **120** (2018), 026402.
- [24] X. Feng, C. M. Yue, Z. D. Song, Q. S. Wu, and B. Wen, *Phys. Rev. Materials*, **2** (2018), 014202.
- [25] Y. Kim, B. J. Wieder, C. L. Kane, and A. M. Rappe, *Phys. Rev. Lett.*, **115** (2015), 036806.
- [26] A. A. Burkov, M. D. Hook, and L. Balents, *Phys. Rev. B*, **84** (2011), 235126.
- [27] H. M. Weng, Y. Y. Liang, Q. N. Xu, R. Yu, Z. Fang, X. Dai, and Y. Kawazoe, *Phys. Rev. B*, **92** (2015), 045108.
- [28] R. Yu, H. M. Weng, Z. Fang, X. Dai, and X. Hu, *Phys. Rev. Lett.*, **115** (2015), 036807.
- [29] R. Bi, Z. B. Yan, L. Lu, and Z. Wang, *Phys. Rev. B*, **96** (2017), 201305(R).
- [30] R. H. Li, H. Ma, X. Y. Cheng, S. L. Wang, D. Z. Li, Z. Y. Zhang, Y. Y. Li, and X.-Q. Chen, *Phys. Rev. Lett.*, **117** (2016), 096401.
- [31] Z. B. Yan, P.-W. Huang, and Z. Wang, *Phys. Rev. B*, **93** (2016), 085138.
- [32] P. Hosur, and X. L. Qi, *Compt. Rend. Phys.*, **14** (2013), 857.
- [33] A. A. Zyuzin, and A. A. Burkov, *Phys. Rev. B*, **86** (2012), 115133.
- [34] M. M. Vazifeh, and M. Franz, *Phys. Rev. Lett.*, **111** (2013), 027201.
- [35] S. A. Parameswaran, T. Grover, D. A. Abanin, D. A. Pesin, and A. Vishwanath, *Phys. Rev. X*, **4** (2014), 031035.
- [36] Y. P. Du, F. Tang, D. Wang, L. Sheng, E.-j. Kan, C.-G. Duan, S. Y. Savrasov and X. G. Wan, *npj Quant. Mater.*, **2** (2017), 3.
- [37] K. Mullen, B. Uchoa, and D. T. Glatzhofer, *Phys. Rev. Lett.*, **115** (2015), 026403.
- [38] J. Z. Zhao, R. Yu, H. M. Weng, and Z. Fang, *Phys. Rev. B*, **94** (2016), 195104.
- [39] S. M. Young, S. Zaheer, J. C. Y. Teo, C. L. Kane, E. J. Mele and A. M. Rappe, *Phys. Rev. Lett.*, **108** (2012), 140405.
- [40] Y. P. Du, B. Wan, D. Wang, L. Sheng, C.-G. Duan and X. G. Wan, *Sci. Rep.* **5** (2015), 14423.
- [41] Z. anorg. allg. Chem., **518** (1984), 161.
- [42] G. Kresse, and J. Furthmüller, *Comput. Mater. Sci.*, **6** (1996), 15.
- [43] J. P. Perdew, K. Burke, and M. Ernzerhof, *Phys. Rev. Lett.*, **77** (1998), 3865.
- [44] A. A. Mostofi, J. R. Yates, Y.-S. Lee, I. Souza, D. Vanderbilt and N. Marzari, *Comput. Phys. Commun.*, **178** (2008), 685.
- [45] N. Marzari, A. A. Mostofi, J. R. Yates, I. Souza and D. Vanderbilt, *Rev. Mod. Phys.*, **84** (2012), 1419.
- [46] I. C. Fulga, and A. Stern, *Phys. Rev. L.*, **95** (2017), 241116.