

铁磁外尔半金属 $\text{Co}_3\text{Sn}_2\text{S}_2$ 中的圆极化声子

杨鲁懿^{1,2,†} 杨润^{3,††} 张田田^{4,†††}

(1 清华大学物理系 低维量子物理全国重点实验室 北京 100084)

(2 量子信息前沿中心 北京 100084)

(3 东南大学物理学院 南京 211189)

(4 中国科学院理论物理研究所 北京 100190)

2025-06-25 收到

† email: luyi-yang@mail.tsinghua.edu.cn

†† email: ryang@seu.edu.cn

††† email: ttzhang@itp.ac.cn

DOI: 10.7693/wl20250706

CSTR: 32040.14.wl20250706

1 声子振动模式

作为晶格振动的“元激发”——声子，其直接影响着固体材料的载流子迁移率、热导率等物性，并在结构相变、传统超导、光散射等物理机制中发挥着重要作用。在1940—1950年代，玻恩与黄昆合作建立了现代晶格动力学理论的核心框架^[1]，通过原子间力常数构建动力学矩阵 $D(\mathbf{q})$ 来描述原子在晶格中的振动行为，将晶格振动方程转化为动量空间的本征值问题。现代计算声子谱的方法(如密度泛函微扰理论)均以玻恩—黄的力学矩阵为基础。

在简谐近似下，原子不再是完全周期性的排列，而是每个原子都在做简谐振动。偏振矢量通常为复数矢量，描述了原胞中每个原子振动的方向(偏振方向)、相位差和振幅比。根据本征矢的形式，实空间原子振动可以分为三类：

(1) 线性振动：当本征矢是实矢量(或所有分量相位相同)时，原胞内所有原子沿固定方向做线偏振振动，相位相同或相反；

(2) 静止：当本征矢中某原子的振幅为零时，这些原子可能因对称操作而振幅抵消，呈现出静止状态(成为振动节点)；

(3) 圆极化运动：当本征矢是复矢量时(且通过 $U(1)$ 变换不能转化为实矢量)，原子在垂直于波矢 $\mathbf{q}$ 的平面内做圆周运动(左旋/右旋)。

偏振矢量对应的原子在实空间的运动方式，取决于晶体对称性、声子模式所在动量点 $\mathbf{q}$ 的小点群以及对应的声子模式的对称性。圆极化的声子模式在20世纪通常被称为“圆极化声子

(circularly polarized phonon)”或“旋振(rotatory vibration)”^[2, 3]，在2008年后也被称为“手性声子(chiral phonon)”^[4, 5]。

2 如何实现圆极化声子？

对于圆偏振极化声子可以定义其声子的角动量 $\mathbf{l}_{\mathbf{v}, \mathbf{q}}$ ^[5-8]。当系统具有时间反演(T)对称性时， $\mathbf{l}_{\mathbf{v}, \mathbf{q}} = -\mathbf{l}_{\mathbf{v}, -\mathbf{q}}$ ；而当系统具有空间反演(P)对称性时， $\mathbf{l}_{\mathbf{v}, \mathbf{q}} = \mathbf{l}_{\mathbf{v}, -\mathbf{q}}$ ；因此当系统同时具有P与T对称性或PT联合对称性时， $\mathbf{l}_{\mathbf{v}, \mathbf{q}} = 0$ 。由此可见，非零圆极化声子存在于P破缺或T破缺或PT破缺的系统中。文献[8]中详细讨论了晶体对称性以及时间反演如何决定了本征矢的形式(包括简并性)以及相应的角动量(包括方向及数值)。

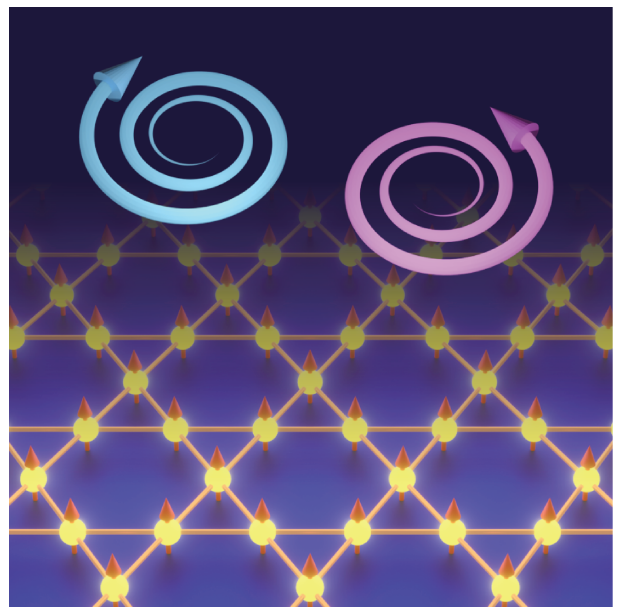
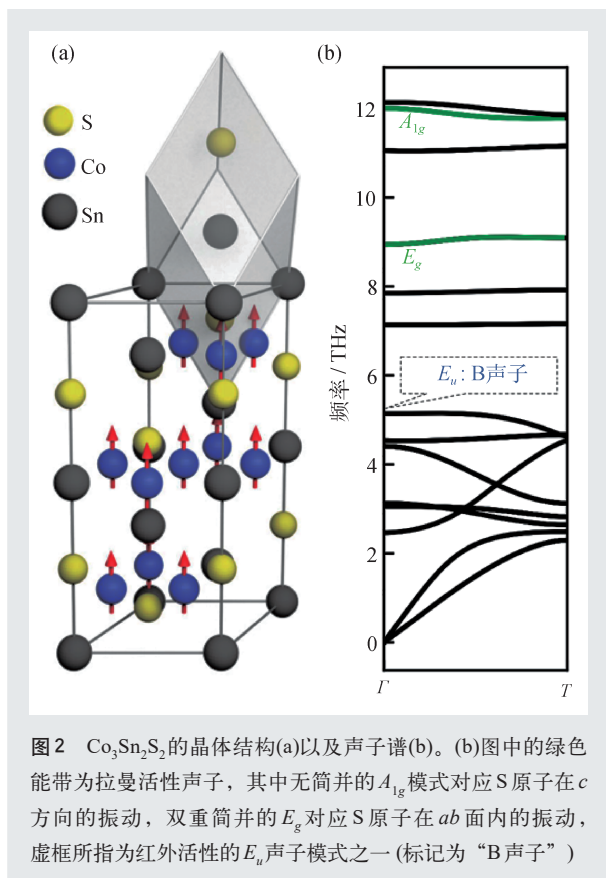


图1 在笼目结构铁磁材料 $\text{Co}_3\text{Sn}_2\text{S}_2$ 中，由于自旋和声子的相互作用，手性相反的声子的能量发生自发劈裂



在以往的研究中，圆偏振极化声子已经在 P 破缺系统，如单层 WSe_2 ^[9]、碲、 $\alpha\text{-HgS}$ 、 $\alpha\text{-石英}$ 等晶体中被发现^[10–12]。在拓扑能带理论中，拓扑不变量(陈数)非零的简并声子点也被称为外尔声子^[13]。值得一提的是，所有的外尔声子都具有圆极化的声子振动模式^[7, 10]。因此，在非长波极限下，所有破坏 PT 对称的“声学模式”也都是圆偏振声子(详见文献[13]附录)。对于 T 破缺系统的材料，则往往需要施加外磁场，如 CeF_3 、 Cd_3As_2 、 PbTe 、 $\text{Fe}_2\text{Mo}_3\text{O}_8$ 和 CoTiO_3 ^[14–18]，并在这些材料中发现了巨大的声子磁矩。然而，通常认为磁场不能直接与声子发生作用，磁场如何诱导圆极化声子的机制尚不明确。另外，磁场还会带来其他响应。例如，电子对磁场的响应更强，如果强磁场下电子物态发生了改变，或诱导晶体结构相变，则会干扰对测量结果的理解。因此，目前现存的一个挑战是，对于具有空间反演对称的体系，能否通过不加外场的情况下破坏 T 以及 PT 对称性，继而观察到圆偏振极化声子？

2021 年牛谦课题组通过理论研究指出，在时间反演对称性自发破缺的磁性拓扑材料中，声子依然可以通过与电子拓扑态耦合，产生声子磁矩以及角动量^[19]。然而直到最近，这一现象在实际材料中还未被观测到。近期，研究者在铁磁外尔半金属 $\text{Co}_3\text{Sn}_2\text{S}_2$ 中发现了磁有序诱导的红外与拉曼活性圆偏振声子及其能量自发劈裂现象(图 1)^[20, 21]。

$\text{Co}_3\text{Sn}_2\text{S}_2$ 是 2018 年发现的笼目结构铁磁外尔半金属^[22, 23]，其电子拓扑态与自旋构型之间的相互作用带来了一系列引人入胜的性质，包括巨大的反常霍尔效应^[22, 23]、显著的磁光效应^[24]、平带引起的轨道磁矩^[25]、S 原子缺陷引起的自旋轨道极化子^[26, 27]，以及最近发现的太赫兹频率自旋轨道耦合的磁振子^[28]。 $\text{Co}_3\text{Sn}_2\text{S}_2$ 具有中心对称的晶格结构(图 2(a))，其磁化易轴方向为晶体的 c 轴。在顺磁相和铁磁相，其空间群分别是 $R\bar{3}m$ 和 $R\bar{3}m'$ 。该材料具有拉曼活性及红外活性两类声子模式(图 2(b))，其中面内简并的声子模式 E_g 和 E_u 的左旋和右旋圆偏振声子具有符号相反的角动量^[8]，所以电子贝利曲率对不同圆偏振声子的能量修正方向是相反的，并且电子贝利曲率越大，简并声子能量劈裂也越大^[19]。在居里温度($T_c \sim 175$ K)下，费米能附近的能带主要由外尔结线环贡献，低能的电子激发与光学声子具有相近的能量，为研究声子与拓扑态之间的相互作用，以及磁性与圆极化声子之间的关系提供了一个完美的平台。因此， $\text{Co}_3\text{Sn}_2\text{S}_2$ 是测量无外场下声子劈裂的理想候选材料。

3 中红外活性的圆偏振声子探测

在 $\text{Co}_3\text{Sn}_2\text{S}_2$ 的光电导实验中，研究者发现在居里温度以下时，原本对称的声子吸收峰展现出不对称线形，这表明声子与电荷激发之间存在强耦合(图 3(a))^[20]。此时电子激发的能量与声子激发的能量相近，使得二者间产生量子干涉。随后，他们进一步求得了右旋和左旋圆偏振通道的光电导 $\sigma_1^\pm(\omega)$ ，如图 3(c)所示，发现其中的声子吸收峰

在峰形、强度和中心位置上均存在明显差异。这表明声子在两种圆偏振通道中与电子系统的耦合程度不同,原因是形成外尔结线环的能带是倾斜的,且具有不同的角动量,如图3(b)所示。因此,根据偶极跃迁选择定则,外尔结线环两侧的电子激发需要吸收不同圆偏振、不同能量的光子。在不同圆偏振通道中,当电子与声子激发能量越接近时,二者产生共振的强度也就越强。因此同一个声子在不同圆偏振通道中和电子激发发生共振的强度也会有差异(图3(b)),导致图3(c)中不同的声子线形。在两种圆偏振通道中,不同程度的电声子耦合打破了声子场的时间反演对称性,最终导致声子峰位的分裂(图3(d))。另外,由于磁交换作用使拓扑能带逐渐移动,外尔结线环上的电子激发及其与声子的耦合表现出明显的温度依赖,声子的圆二色性也表现出显著的温度依赖性(图3(d))。

4 拉曼活性的圆偏振声子探测

研究者利用圆偏振分辨的磁一拉曼散射光谱,系统性地研究了 $\text{Co}_3\text{Sn}_2\text{S}_2$ 中拉曼活性声子的性质^[21]。在室温下,由于时间反演对称性的存在, E_g 模式是简并的(图4(a))。但在铁磁转变温度以下,由于自发磁化作用,即使在没有外加磁场的情况下,手性相反的 E_g 声子模式之间也出现了显著的自发劈裂(图4(b)),在低温时的劈裂值达到 1.27 cm^{-1} 。当磁化方向反向时,劈裂能量也随之反向(图4(c))。随着温度升高,劈裂逐渐减小,并在居里温度附近完全消失。进一步的扫描磁场实验发现,两种圆偏声子的中心频率都呈现出明显的磁滞行为,劈裂

能量同样表现出明显的磁滞回线。然而,在固定磁化方向的情况下,劈裂对外加磁场的响应非常弱,这与以往在 CeCl_3 、 $\text{Fe}_2\text{Mo}_3\text{O}_8$ 和 CoTiO_3 等体系中,圆偏振声子劈裂依赖外加磁场的现象形成鲜明对比。这些观测结果表明,圆偏振声子的能量劈裂源于材料的铁磁序引发的自旋—声子耦合,从而导致声子系统的时间反演对称性(以及镜面对称性)破缺(Γ 点声子的对称性从顺磁相的 $\bar{3}m$ 降低到铁磁相的 $\bar{3}$)。

5 小结与展望

关于 $\text{Co}_3\text{Sn}_2\text{S}_2$ 中圆偏振声子的研究,不仅首次证实了圆偏振声子可以通过材料的磁化状态进

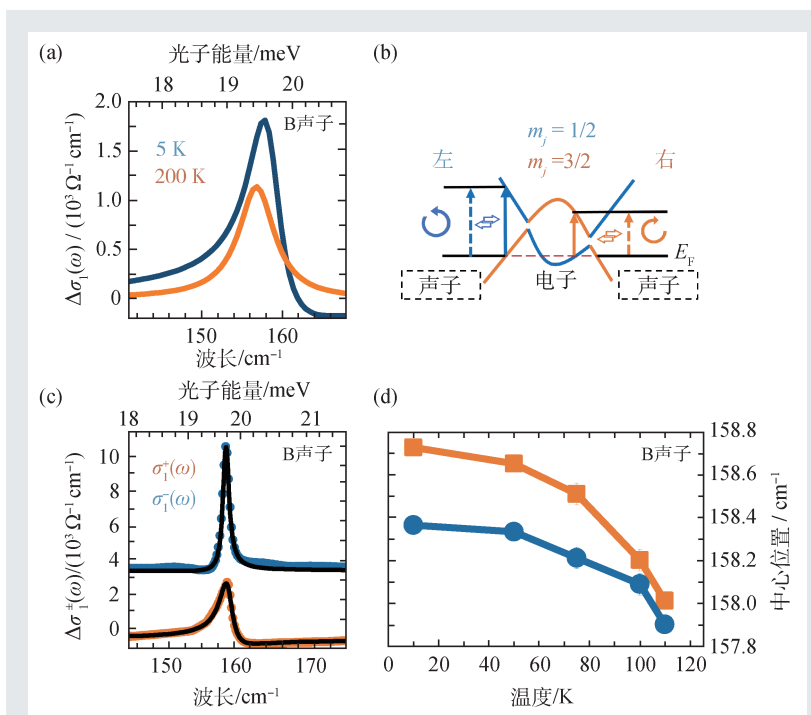


图3 $\text{Co}_3\text{Sn}_2\text{S}_2$ 中红外活性的 E_g 模式的圆二色性。鉴于实验上观测到多个 E_g 声子模式,我们以其中一个为例进行说明,对应B声子标记在图1(b)中。(a)在居里温度($T_c \sim 175\text{ K}$)以下,B声子表现出明显的非对称线性;(b)每种圆偏振下的电声子耦合的示意图,其中构成外尔节点环的能带具有不同的角动量+3/2(橙色)和+1/2(蓝色)。图中的实线和虚线分别表示电子和声子的直接带间跃迁。当声子在某一圆偏振通道中的能量和相应电子激发能量一致时会导致非常强的共振,而二者能量偏离时,共振随之减弱。由于外尔结线环是倾斜的,对于同一个声子,在两个圆偏振通道中和电子激发耦合的强度就会产生差异;(c)在10 K时,两种圆偏振下B声子的线形。图中黑色实线是Fano模型的拟合;(d)B声子在两个圆偏振通道中的峰位随温度的变化

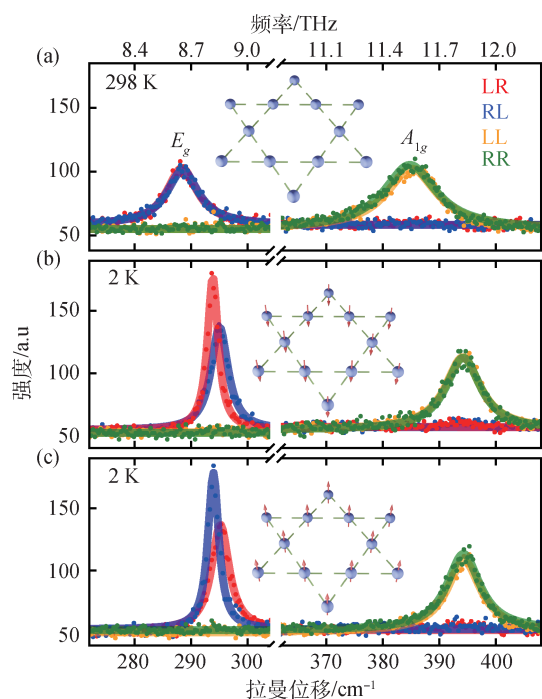


图4 自发磁化诱导的圆偏振声子能量劈裂 (a)在298 K时,使用同圆偏振(LL/RR)与反圆偏振(LR/RL)分别测量无简并的 A_{1g} 模式和双重简并的 E_g 模式的结果;(b)零磁场下冷却至2 K,原本双重简并的手性相反的 E_g 模式在能量上发生自发劈裂,表现出峰强度和线宽的明显差异;(c)通过外加磁场翻转磁化方向后,劈裂的符号也随之发生改变。其中,插图图为Co原子构成的笼目结构,红色箭头代表自旋的方向

行有效调控,而且揭示了磁性与圆偏振声子之间的内在关联,为实现磁性和圆偏振声子之间的相互控制开辟了新途径。手性声子的发现或许可以帮助人们更好地理解 $\text{Co}_3\text{Sn}_2\text{S}_2$ 中奇异的热学性质,如巨大的反常能斯特效应^[29]。近年来,随着牛谦教授等人提出的分子贝利曲率理论,更是为圆偏振声子相关物性研究提供了强大的理论支持。此外, $\text{Co}_3\text{Sn}_2\text{S}_2$ 中圆偏振声子的能量在数十meV范围内,与材料中的手性费米子(外尔费米子)相当,这为利用圆偏振声子调控拓扑电子态提供了潜在可能。通过选取合适的光子能量进行共振激发,有望在超快(几十飞秒至几十皮秒)时间尺度下实现圆偏振声子、外尔费米子与磁有序之间的相互调控,为未来构筑超快量子器件奠定基础。

参考文献

- [1] Born M, Huang K. Dynamical Theory of Crystal Lattices. Oxford University Press, 1996
- [2] Johnson R C. Phys. Lett. B, 1982, 114: 147
- [3] Schaack G. J. Phys. C, 1976, 9: L297
- [4] Bermudez A, Martin-Delgado M A. J. Phys. A: Math. Theor., 2008, 41: 485302
- [5] Zhang L, Niu Q. Phys. Rev. Lett., 2014, 112(8): 085503
- [6] 俞杭, 徐锡方, 牛谦等. 物理学报, 2015, 64(18): 186302
- [7] Zhang T, Murakami S, Miao H. Nat. Commun., 2025, 16(1): 3560
- [8] Zhang S *et al.* 2025, arXiv: 2503.22794
- [9] Zhu H, Yi J, Li M Y *et al.* Science, 2018, 359(6375): 579
- [10] Zhang T, Huang Z, Pan Z *et al.* Nano Letters, 2023, 23(16): 7561
- [11] Ishito K, Mao H, Kousaka Y *et al.* Nature Physics, 2023, 19(1): 35
- [12] Ueda H, García-Fernández M, Agrestini S *et al.* Nature, 2023, 618(7967): 946
- [13] Zhang T, Song Z, Alexandradinata A *et al.* Phys. Rev. Lett., 2018, 120(1): 016401
- [14] Luo J, Lin T, Zhang J *et al.* Science, 2023, 382(6671): 698
- [15] Yue S, Chorsi H T, Goyal M *et al.* Physical Review Research, 2019, 1(3): 033101
- [16] Baydin A, Hernandez F G G, Rodriguez-Vega M *et al.* Phys. Rev. Lett., 2022, 128(7): 075901
- [17] Wu F, Bao S, Zhou J *et al.* Nature Physics, 2023, 19(12): 1868
- [18] Chaudhary S, Juraschek D M, Rodriguez-Vega M *et al.* Phys. Rev. B, 2024, 110(9): 094401
- [19] Ren Y *et al.* Phys. Rev. Lett., 2021, 127(18): 186403
- [20] Yang R, Zhu Y Y, Steigleder M *et al.* Phys. Rev. Lett., 2025, 134(19): 196905
- [21] Che M, Liang J, Cui Y *et al.* Phys. Rev. Lett., 2025, 134(19): 196906
- [22] Wang Q, Xu Y, Lou R *et al.* Nat. Commun., 2018, 9(1): 1
- [23] Liu E, Sun Y, Kumar N *et al.* Nature Physics, 2018, 14(11): 1125
- [24] Okamura Y *et al.* Nat. Commun., 2020, 11(1): 4619
- [25] Yin J X, Zhang S S, Chang G *et al.* Nat. Phys., 2019, 15: 443
- [26] Xing Y, Shen J, Chen H *et al.* Nat. Commun., 2020, 11: 5613
- [27] Chen H, Xing Y, Tan H *et al.* Nat. Commun., 2024, 15: 2301
- [28] Che M, Chen W, Wang M *et al.* Sci. Adv., 2025, 11: eadw1182
- [29] Yang H, You W, Wang J *et al.* Phys. Rev. Mater., 2020, 4: 024202