

百年磁光效应的新认识*

冯万祥 周小东 姚裕贵[†]

(北京理工大学物理学院 先进光电量子结构设计与测量教育部重点实验室 北京 100081)

2021-09-13收到

[†] email: ygyao@bit.edu.cn

DOI: 10.7693/wl20220305

New understanding in century-old magneto-optical effects

FENG Wan-Xiang ZHOU Xiao-Dong YAO Yu-Gui[†]

(Key Laboratory of Advanced Optoelectronic Quantum Architecture and Measurement, Ministry of Education, School of Physics, Beijing Institute of Technology, Beijing 100081, China)

摘要 磁光效应反映了光与磁之间最基本的相互作用,是凝聚态物理学中一个古老且迷人的研究议题。自1846年发现磁光法拉第效应至今,关于磁光效应的研究已经历了一个半世纪之久。文章将介绍磁光效应领域的三项最新研究进展。其一,磁光效应被发现可以存在于净磁化强度为零的反铁磁中,且表现出对矢量自旋手性的强烈依赖性。其二,磁光效应的物理起源被发现可以是与自旋轨道耦合和能带交换劈裂无关的标量自旋手性,即拓扑磁光效应;拓扑磁光效应可以进一步实现量子化,即量子拓扑磁光效应。其三,磁光效应被发现与非磁性原子位置变化引起的晶体手性密切相关,即晶体手性磁光效应。这三项研究进展突破了过去人们对磁光效应的传统认识,或将推动该领域的进一步发展。

关键词 磁光效应,反铁磁,自旋手性,晶体手性

Abstract Magneto-optical (MO) effects, reflecting the basic interactions between light and magnetism, have long been recognized as one of the most attractive subjects in condensed matter physics. Since the discovery of the MO Faraday effect in 1846, studies of MO effects have continued for more than a century and a half. In this article, we introduce three new discoveries in this field. First, MO effects are surprisingly found to exist in antiferromagnets even though the net magnetization is zero, and are very sensitive to the vector spin chirality. Second, they can originate from the scalar spin chirality independent of spin-orbit coupling and band exchange splitting, namely, topological MO effects, which can be further quantized. Third, they are strongly related to the crystal chirality induced by rearrangement of the nonmagnetic atoms, which is called crystal chirality MO effects. These new advances overturn the traditional understanding of MO effects in the past, and may have a far-reaching impact on the development of this field.

Keywords magneto-optical effects, antiferromagnets, spin chirality, crystal chirality

* 国家重点研发计划(批准号:2020YFA0308800)、国家自然科学基金(批准号:12061131002,11874085,11734003)资助项目

1 引言

磁光效应是凝聚态物理学中一种非常古老的实验现象，其反映了光与磁之间的基本相互作用。从广义上来讲，一束光经过磁性物质的透射或反射后，只要其状态发生了改变，都可以被称为磁光效应。因此，磁光效应的家族十分庞大。在本文中，我们只讨论自然界中真实存在的磁性固体材料中所发生的磁光效应，不包括各种人工微结构或超材料中的磁反应现象。1846年，迈克尔·法拉第(Michael Faraday)发现了第一个磁光效应，即磁光法拉第效应(magneto-optical Faraday effect)^[1]，其实验现象为：当线偏振光穿过置于外磁场中的硼硅酸铅玻璃后，透射光变成了椭圆极化光，且极化平面发生一定角度的偏转(图1(a))。30年后，约翰·克尔(John Kerr)在铁表面的反射光中也观察到了类似的现象(图1(a))，被称为磁光克尔效应(magneto-optical Kerr effect)^[2]。根据入射光平面与材料磁化方向之间的几何关系，磁光效应可以具体地分为极性、纵向和横向等不同类型。以法拉第效应和克尔效应为代表的磁光效应不仅推动了19世纪末麦克斯韦电磁学理论的建立，同时也为现代科学提供了一种精湛的光谱探测技术，例如可用于可视化磁畴^[3, 4]、探测和操纵磁序^[5, 6]、测量低维系统的巡游铁磁性^[7, 8]。

磁光效应的理论计算公式可以很容易地由麦

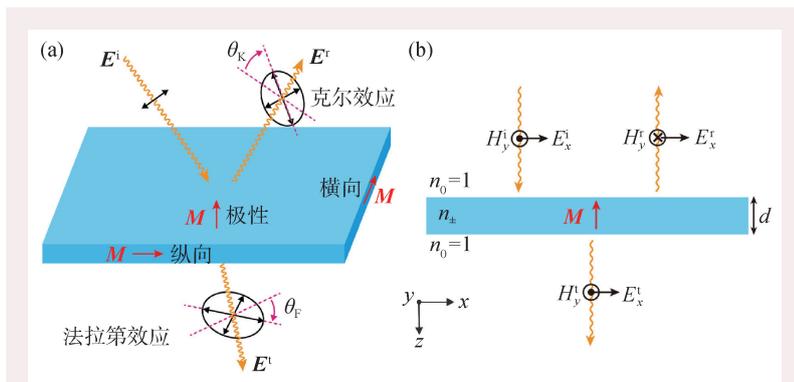


图1 (a)磁光法拉第效应和克尔效应。根据磁化方向与入射光平面的几何关系，可分为极性、纵向和横向三种类型；(b)线偏振光从真空($n_0=1$)垂直入射到折射率为 n_+ 的磁性材料，入射光沿 z 方向传播，其电场和磁场分别沿着 x 和 y 方向

克斯韦方程组和本构关系导出^[9-13]。由于篇幅所限，这里仅介绍简要的推导过程。以极性几何结构为例，考虑一束线偏振光沿着 z 方向垂直入射到磁性材料的表面(图1(b))，其电场可以表达为 $E = E_0 e_x e^{i\omega n_0 z/c - i\omega t}$ (真空中折射率 $n_0 = 1$)。如果磁性材料光电导率的非对角元 σ_{xy} (也称为光霍尔电导率)不为零，线偏振光的左旋、右旋圆偏振在材料内部的折射率并不相同，即 $n_{\pm} = \sqrt{\sigma_{xx} \pm i\sigma_{xy}}$ 。当线偏振光经过磁性材料透射或反射后，其电场变为

$$E_{\pm} = \frac{1}{\sqrt{2}} E_0 (e_x \pm i e_y) e^{i\omega n_{\pm} z/c - i\omega t} \quad (1)$$

可见，左旋、右旋圆偏振光的振幅和相位都不再相等，线偏振光将变成椭圆偏振光。根据几何定义，克尔旋转角(θ_K)是极化椭圆主轴相对于入射线偏振光的偏转，克尔椭圆率(ϵ_K)是极化椭圆短轴与长轴的比值，可以得到磁光克尔效应的精确表达式，

$$\frac{1 + \tan \epsilon_K e^{-2i\theta_K}}{1 - \tan \epsilon_K} = \frac{1 + n_+}{1 - n_+} \frac{1 - n_-}{1 + n_-} \quad (2)$$

类似地，按照几何定义可以求得磁光法拉第效应的精确表达式，

$$\frac{1 - \tan \epsilon_F e^{2i\theta_F}}{1 + \tan \epsilon_F} = e^{\frac{i\omega d(n_+ - n_-)}{c}} \quad (3)$$

其中 d 为薄膜厚度。一般来说，克尔和法拉第效应的旋转角都比较小(小于 1°)，上面两个式子可以展开成小角度下的近似公式，

$$\begin{aligned} \phi_K &= \theta_K + i\epsilon_K \\ &= \frac{-\sigma_{xy}}{\sigma_{xx} \sqrt{1 + i(4\pi/\omega)\sigma_{xx}}} \quad (4) \end{aligned}$$

$$\phi_F = \theta_F + i\epsilon_F = (n_+ - n_-) \frac{\omega d}{2c} \quad (5)$$

这便是文献中经常看到的关于磁光克尔和法拉第效应的理论计算公式，其关键是光霍尔电导率 σ_{xy} 。

在发现磁光效应的一个世纪之后(20世纪50年代)，由于固体能带理论的发展，人们才第一次从理论上解释了磁光效应的物理起源^[14]。

自那时起，人们对于磁光效应的理解逐渐形成了以下三个基本认识^[9-13]：第一，磁光效应的大小与磁性材料的自发磁化强度成正比，因而磁光效应只能出现在净磁化强度非零的铁磁或亚铁磁中，而不可能出现在净磁化强度为零的反铁磁中；第二，出现磁光效应的必要条件是自旋轨道耦合和能带交换劈裂，二者缺一不可；第三，磁光效应主要受到材料中磁性原子的控制，而非磁性原子无关。

然而，在最近几年关于磁光效应的研究当中，这三点传统认识都受到了挑战。首先，磁光效应被发现可以在净磁化强度为零的反铁磁中出现^[15]。其次，磁光效应的物理起源并不仅限于能带交换劈裂和自旋轨道耦合，非共面反铁磁中的标量自旋手性也可以导致磁光效应，出现拓扑磁光效应及其量子化现象^[16]。最后，磁性材料中非磁性原子的位置变化会引入晶体手性，可以改变磁光效应的符号，即晶体手性磁光效应^[17]。迄今为止，对磁光效应的研究已有170多年的历史，然而在这个古老的研究领域中依然不断有新的发现。在文章中，我们将详细地介绍以上三项最新研究进展。

2 反铁磁中可以存在磁光效应

固体材料中的磁性来源于具有不满电子壳层的原子的固有磁矩，包括自旋磁矩和轨道磁矩两部分的贡献。在大多数材料中，自旋磁矩要比轨道磁矩大很多，是构成原子磁矩的主要部分。由于磁性原子之间的交换相互作用，自旋磁矩可以自发地排列起来，导致了铁磁、亚铁磁和反铁磁现象。铁磁体中所有原子的自旋磁矩均平行排列地指向相同方向，系统总磁矩(或者磁化强度)不为零(图2(a))；亚铁磁体中相邻原子之间的自旋磁矩反平行排列但大小不相等，存在有限的净磁化强度(图2(b))；反铁磁体中相邻原子之间的自旋磁矩反平行排列且大小相等，净磁化强度等于零(图

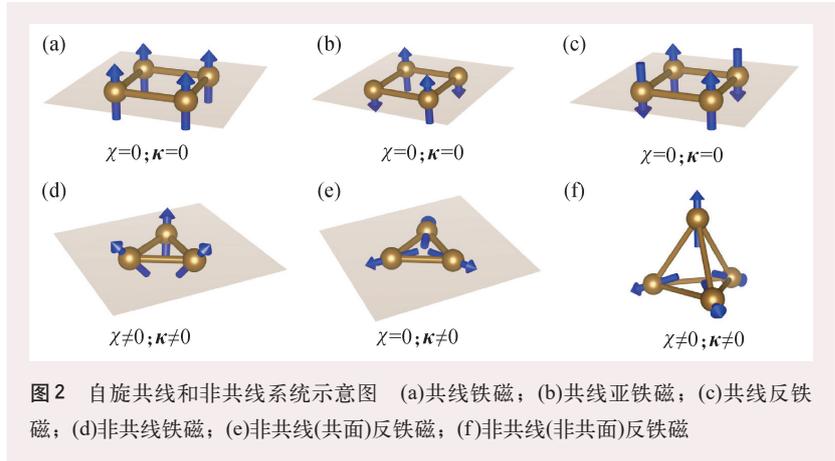


图2 自旋共线和非共线系统示意图 (a)共线铁磁；(b)共线亚铁磁；(c)共线反铁磁；(d)非共线铁磁；(e)非共线(共面)反铁磁；(f)非共线(非共面)反铁磁

2(c))。除了自旋共线排列的铁磁、亚铁磁和反铁磁之外，实际上还存在着很多自旋非共线的磁性系统。非共线自旋结构中相邻原子的自旋磁矩不再是严格的平行或反平行，而是存在0到 π 之间的某个夹角(图2(d)–(f))。净磁化强度不为零的自旋非共线系统被称为手性铁磁(图2(d))；净磁化强度为零的自旋非共线系统被称为手性反铁磁，且可以分为共面(图2(e))和非共面(图2(f))两种情况，分别用矢量自旋手性 κ ，

$$\kappa = \sum_{\langle ij \rangle} [\vec{S}_i \times \vec{S}_j]_z, \quad (6)$$

和标量自旋手性 χ ，

$$\chi = \sum_{\langle ijk \rangle} \vec{S}_i \cdot (\vec{S}_j \times \vec{S}_k), \quad (7)$$

来描述，其中 \vec{S}_i 为第*i*个原子的自旋磁矩。

判断一个磁性材料中能否出现磁光效应，实际上应该从对称性的角度出发。铁磁、亚铁磁和反铁磁都破坏了时间反演对称性(*T*)，所以原则上都可以出现磁光效应。过去在反铁磁中没有发现磁光效应的原因是：在常见的共线反铁磁中，虽然时间反演对称性破缺，但还存在着时间反演对称性与某些空间对称性(例如平移(*t*)、空间反演(*I*))的联合对称操作——它们会禁止磁光效应的出现。以一维双粒子反铁磁为例，时间反演与半晶格矢量平移的组合操作 $Tt_{1/2}$ 是系统的“好”对称操作，可以同时使晶体和磁结构恢复到初始状态。由于光霍尔电导率具有平移不变性并且在时间反演操作下是奇函数^[18]，有 $t_{1/2}\sigma_{xy} = \sigma_{xy}$ 和 $T\sigma_{xy} = -\sigma_{xy}$ 。那么，组合操作将改变光霍尔电导

率的符号, 即 $Tt_{1/2}\sigma_{xy} = -\sigma_{xy}$ 。因此, 一维双粒子反铁磁中的光霍尔电导率 σ_{xy} 一定为零, 磁光效应也必然消失(参考公式(4)和(5))。

如果反铁磁中缺乏这些联合对称操作(事实上也是可能的), 磁光效应当然也可以存在于反铁磁中, 尽管其净磁化强度为零。首先来看非共线(共面)反铁磁, 例如 Mn_3X ($X = Rh, Ir, Pt$)和 Mn_3Y ($Y = Sn, Ge, Ga$)。 Mn_3X 具有两种类型的晶体结构, 有

序的 $L1_2$ 相和无序的 γ 相。其中, 有序的 $L1_2$ 相是非共线(共面)反铁磁, 具有 T1 和 T2 两种自旋结构, 如图 3(a), (b)所示。三个磁性的 Mn 原子位于 (111)平面内, 构成二维笼目磁格子, Mn 原子的自旋指向由三个最近邻 Mn 原子构成的三角形的中心或顶角, 如图 3(c), (d)所示。 Mn_3Y 具有六角晶体结构, Mn 原子在 (0001)平面上也构成二维笼目磁格子, 具有共面非共线的自旋取向^[19]。 Mn_3X 和 Mn_3Y 都缺乏“好”的联合对称操作, 因而在对称性上允许磁光效应的出现。

2015 年, W. X. Feng 等人^[15]最早在理论上预言了非共线反铁磁 Mn_3X 中可以出现较大的磁光克尔效应。从图 4 可以看到, T1 和 T2 自旋结构的光霍尔电导率 σ_{xy} 几乎相等, 但都不为零。 σ_{xy} 在低能部分呈现较强的震荡变化, 随着能量的升高逐渐趋于零。光霍尔电导率的正、负值说明带间激发主要由左旋、右旋极化光诱导。如果将所有 Mn 原子的自旋进行 180° 反转(相当于进行时间反演操作), σ_{xy} 将会改变符号。由公式(4)可知, 非零的光霍尔电导率决定了磁光克尔效应一定存在。图 5 给出了 Mn_3X 的 T1 和 T2 自旋结构下的磁光克尔谱, 克尔旋转角和椭圆率的确不为零。磁光克尔谱与光霍尔电导率 σ_{xy} 具有非常相似

的谱结构, 其主要差别在于一个负号。这一点可以从公式(4)看出, 即光霍尔电导率 σ_{xy} 决定了磁光克尔谱的整体轮廓(各个峰出现的能量位置以及正负号), 而光电导率对角元 σ_{xx} 调制磁光克尔谱中各个峰的相对高度。 Mn_3X 磁光效应的大小呈现出这样的趋势: $Mn_3Pt > Mn_3Ir > Mn_3Rh$, 反映了 X 原子的自旋轨道耦合强度对磁光谱强弱的影响。 Mn_3Pt 的克尔旋转角 0.6° 是比较大的, 可以和传统铁磁金属 Fe 或 Co 相比较^[20, 21]。不久之后, 就有实验工作^[4, 22, 23]在非共线(共面)反铁磁 Mn_3Sn 和 Mn_3Ge (与 Mn_3X 具有相同的自旋结构)中观察到了磁光克尔效应, 证实了反铁磁中可以存在磁光

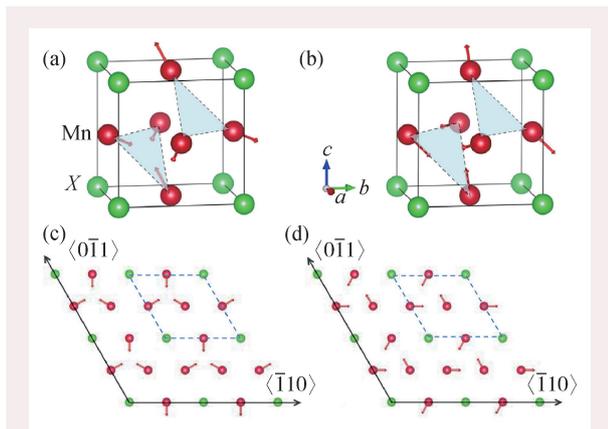


图3 立方 $L1_2$ 相 Mn_3X ($X = Rh, Ir, Pt$)的晶体和磁结构 (a) T1 自旋结构; (b) T2 自旋结构; (c) T1 自旋结构的(111)平面; (d) T2 自旋结构的(111)平面, (c)和(d)中的虚线代表二维笼目磁格子的原胞^[15]

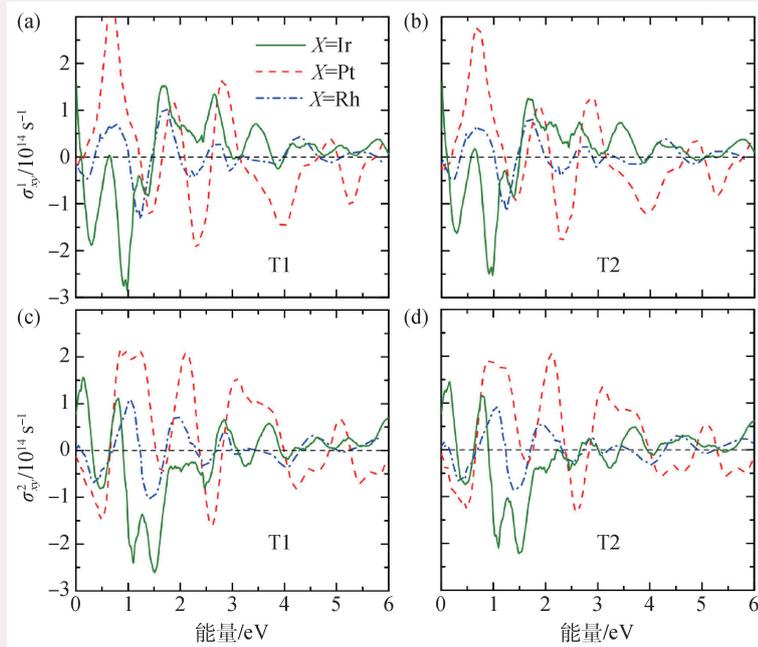


图4 Mn_3X 的光霍尔电导率 (a), (b) T1 和 T2 自旋结构的光霍尔电导实部; (c), (d) T1 和 T2 自旋结构的光霍尔电导虚部^[15]

效应的理论预言^[15]。

现在来分析一下非共线(共面)反铁磁 Mn_3X 和 Mn_3Y 中出现磁光效应的物理原因。尽管净磁化强度为零，但是系统中缺乏时间反演对称性与空间对称性(平移或空间反演)联合在一起的“好”对称操作，其能带的 Kramers 自旋简并还是被破坏了。在考虑自旋轨道耦合的情况下， Mn_3X 和 Mn_3Y 中确实可以出现磁光效应。因此，理论工作^[15]打破了磁光效应的第一点传统认识，即净磁化强度为零的反铁磁中也是可以出现磁光效应的；但是没有打破第二点传统认识，即 Mn_3X 和 Mn_3Y 中之所以出现磁光效应，还是同时需要能带交换劈裂和自旋轨道耦合。

除了 Mn_3X 和 Mn_3Y 之外，反钙钛矿 Mn_3XN ($X = Ga, Zn, Ag, Ni$) 也是一类早已被发现且非常重要的非共线(共面)反铁磁^[24-27]。如图 6(c)所示，非磁性的 X 原子和 N 原子分别占据立方体的顶角和体心，三个磁性 Mn 原子在(111)面上形成了二维笼目磁格子。随着温度(T)的变化， Mn_3XN 呈现出不同的自旋结构。以 Mn_3NiN 为例^[25]，当 $T < 163$ K 时，三个 Mn 原子的自旋沿着立方体的面对角线，称为 R1 相；当 $163 \text{ K} < T < 266$ K 时，三个 Mn 原子的自旋指向由三个最近邻 Mn 原子构成的三角形的中心，称为 R3 相；在 R1 和 R3 相之间，会出现中间相 R2。其他的 Mn_3XN 化合物也会出现类似的温度依赖的磁相变过程^[24-27]，可以用偏离立方体面对角线的角度 θ 来表征不同的自旋结构，则 R1、R2、R3 相分别对应 $\theta = 0^\circ$ 、 $0^\circ < \theta < 90^\circ$ 、 $\theta = 90^\circ$ 。如果交换任意两个 Mn 原子的自旋，则矢量自旋手性将会发生改变，例如从右手自旋手性($\kappa = +1$) (图 6(a))变到左手自旋手性($\kappa = -1$) (图 6(b))。磁晶各向异性性能的计算结果(图 6(e))显示，右手和左手矢量自旋手性的自旋结构都可能存在^[18]，这使得 Mn_3XN 的磁结构更加丰富。

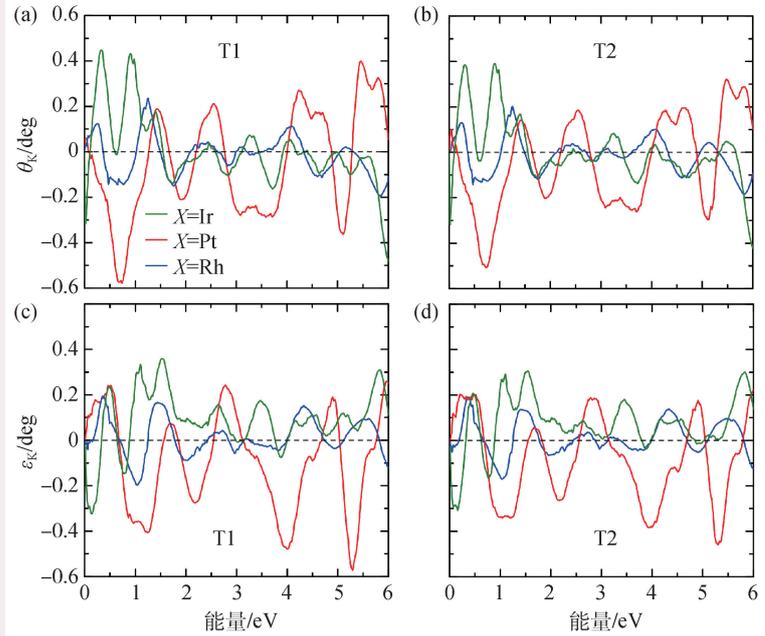


图5 Mn_3X 的磁光克尔谱 (a), (b) T1 和 T2 自旋结构的磁光克尔旋转角; (c), (d) T1 和 T2 自旋结构的磁光克尔椭圆率^[15]

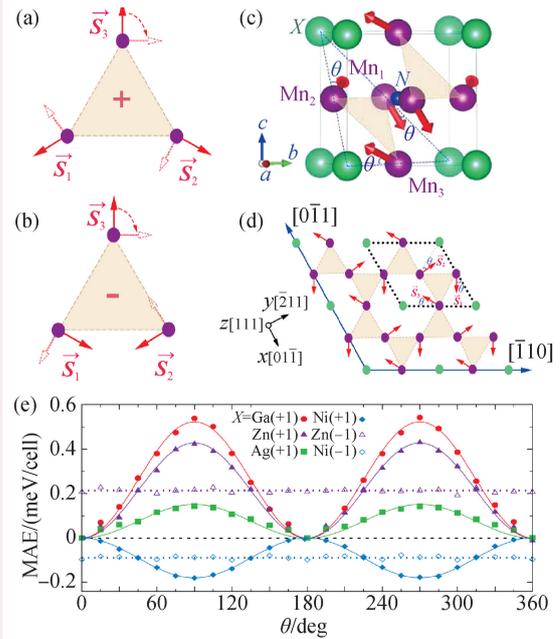


图6 非共线(共面)反铁磁 Mn_3XN 的晶体结构、磁结构和磁晶各向异性性能 (a)具有右手矢量自旋手性的自旋结构，空心箭头代表三个自旋的顺时针旋转，可以产生相同自旋手性下的其他自旋取向；(b)具有左手矢量自旋手性的自旋结构；(c) Mn_3XN 的三维晶体和磁结构， θ 代表三个 Mn 原子的自旋在(111)平面上的顺时针旋转角度；(d) Mn_3XN 的(111)平面，虚线代表二维笼目磁格子的原胞；(e)左、右自旋手性结构下的磁晶各向异性性能(MAE)随着自旋转角 θ 的变化关系^[18]

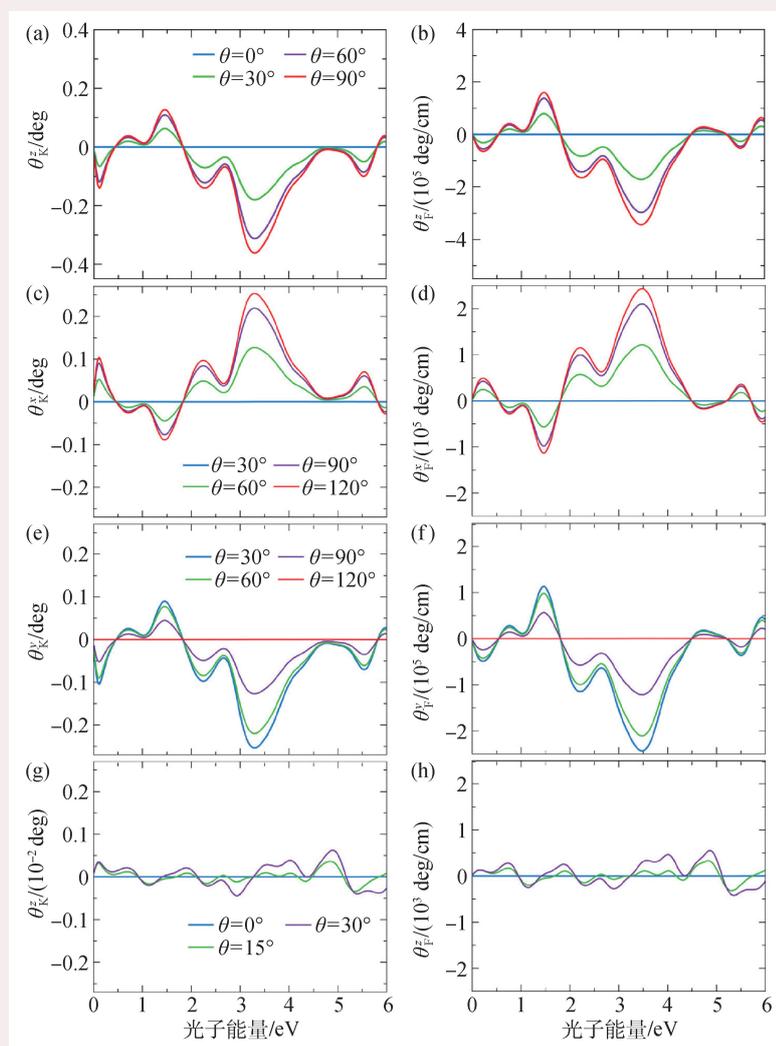


图7 (a), (b)具有右手矢量自旋手性的Mn₃NiN在不同自旋转角 θ 下的磁光克尔谱和法拉第谱; (c—h)具有左手矢量自旋手性的Mn₃NiN在不同自旋转角 θ 下的磁光克尔谱(c, e, g)和法拉第谱(d, f, h)^[18]

非共线(共面)反铁磁Mn₃XN的磁光效应受到矢量自旋手性 κ 和自旋转角 θ 的重要影响,如图7所示。从物理上来说,磁光克尔、法拉第旋转角都可以写为轴矢量的形式,即 $\theta_{\kappa} = [\theta_{\kappa}^x, \theta_{\kappa}^y, \theta_{\kappa}^z]$ 、 $\theta_{\text{F}} = [\theta_{\text{F}}^x, \theta_{\text{F}}^y, \theta_{\text{F}}^z]$ 。对于右手矢量自旋手性,磁光克尔和法拉第角的z方向分量可以存在,即 θ_{κ}^z 和 θ_{F}^z 可以不为零,如图7(a), 7(b)所示。具体的,当 $\theta=0^\circ$ (R1相)时, $\theta_{\kappa}^z = \theta_{\text{F}}^z = 0$;只要 $\theta \neq 0^\circ$ (R2相或R3相)时, θ_{κ}^z 和 θ_{F}^z 就不为零。从群理论上可以比较容易地理解^[18]:当 $\theta=0^\circ$ 时,磁点群 $\bar{3}1m$ 包含有三个垂直于笼目磁格子的镜面操作,会使得磁光克尔和法拉第角的所有分量全

部消失;当 $0^\circ < \theta \leq 90^\circ$ 时,三个镜面均消失,非零的 θ_{κ}^z 和 θ_{F}^z 可以出现。此外,随着 θ 角的逐渐增大, θ_{κ}^z 和 θ_{F}^z 逐渐增强,这来源于逐渐增大的能带交换劈裂和贝里曲率在布里渊区内分布不平衡的加剧。对于左手矢量自旋手性,磁光克尔和法拉第角在三个方向上的分量 θ_{κ}^x 、 θ_{κ}^y 、 θ_{κ}^z 和 θ_{F}^x 、 θ_{F}^y 、 θ_{F}^z 都可以不为零,并且随着 θ 角呈现出周期性的变化,分别如图7(c), (e), (g)和(d), (f), (h)所示。

除了非共线反铁磁之外,某些共线反铁磁中也可以出现磁光效应。N. Sivadas等人^[28]在理论上发现共线反铁磁MnPSe₃的双层结构具有联合对称操作 TI (T 为时间反演对称性; I 为空间反演对称性),在自然状态下是没有磁光效应的;如果在垂直方向上施加电场,就可以破坏 TI 对称操作,进而诱发磁光效应。此外,这个理论工作^[28]发现磁光效应的出现需要自旋轨道耦合和能带交换劈裂,但是自旋轨道耦合是充要条件,而能带交换劈裂是必要但不充分条件,即能带交换劈裂并不一定会导致磁光效应。相似地,F. R. Fan等人^[29]在多铁材料Cr基钙钛矿有机化合物中发现了外电场操控的磁光克尔效应。

3 拓扑磁光效应及其量子化

过去,人们认为磁光效应的物理起源是能带交换劈裂和自旋轨道耦合^[9-14]。能带交换劈裂本质上来源于外部磁场或磁性材料内部自发磁化导致的塞曼效应;自旋轨道耦合进一步劈裂能带,使自旋极化电子的轨道运动与入射极化光相耦合。能带交换劈裂和自旋轨道耦合必须同时存

在，才能使得左旋和右旋极化光在磁性材料中有不同程度的吸收，最终导致一系列磁光现象(例如法拉第和克尔效应)。这样的论述可以在很多学术专著、综述论文和研究论文中找到，几乎是所有人之前已经达成的共识。

然而，W. X. Feng 等人在 2020 年的一项工作^[16]指出：在非共面反铁磁中(图 8(b))，标量自旋手性会产生一个虚拟的磁场，其作用等效于外加磁场或材料的自发磁化，也可以诱发磁光效应。类比于拓扑霍尔效应，可以将这类磁光效应称为“拓扑”磁光效应。拓扑磁光效应起源于标量自旋手性，既不需要能带交换劈裂，也不需要自旋轨道耦合，因而完全不同于普通的磁光效应。对于二维非共面反铁磁体(图 9(c))，拓扑磁光效应可以在低频极限下实现量子化，即量子拓扑磁光效应。下面以实际存在的非共面反铁磁材料 $\gamma\text{-Fe}_x\text{Mn}_{1-x}$ 和 K_xRhO_2 为例，分别讨论新奇的拓扑和量子拓扑磁光效应。

$\gamma\text{-Fe}_x\text{Mn}_{1-x}$ 是一种具有面心立方结构的无序合金，Fe 和 Mn 原子以一定的合金比例分布在立方体的顶点和面心位置上，每个格点的自旋取向随着 x 发生变化，显示出复杂的自旋结构。当 $x < 0.4$ 或 $x > 0.8$ 时， $\gamma\text{-Fe}_x\text{Mn}_{1-x}$ 是共线的 1Q 和 2Q 反铁磁态(图 8(a), (c))；当 $0.4 < x < 0.8$ 时，是非共面的 3Q 反铁磁态(图 8(b))。在不考虑自旋轨道耦合的情况下，图 8(d), (e)画出了 $\gamma\text{-Fe}_{0.5}\text{Mn}_{0.5}$ 的 3Q 态在不同应变下的磁光谱，可以看到当应变为零 ($\delta=1$) 时，磁光效应不会出现。这是因为正四面体的四个面上都存在标量自

旋手性引起的虚拟磁通，且是彼此抵消的。如果沿着某个方向，例如[111]方向，施加单轴的拉伸 ($\delta > 1$) 或者压缩 ($\delta < 1$) 应变，正四面体将不复存在，四个面上的虚拟磁通无法相互抵消，会产生一个沿着[111]方向的虚拟磁场，最终导致磁光效应。也可以从群论的观点来解释，应变前的磁点群为 $m\bar{3}m'$ ，其中存在“好”的联合对称操作，抑制了磁光效应；而施加应变后，磁点群变为 $\bar{3}1m'$ ，可以允许磁光效应的出现。拉伸 ($\delta > 1$) 或者压缩 ($\delta < 1$) 应变会导致磁光效应具有不同的符号，如图 8(d), (e) 所示。磁光效应的强弱可通过对克尔或法拉第旋转角的频率积分来描述，即所谓的磁光强度 $\text{MOS}_{\text{K,F}} = \int_0^{+\infty} \hbar |\theta_{\text{K,F}}(\omega)| d\omega$ 。图 8(f) 显示磁光强度与应变的大小成正比关系。

有趣的是，在不考虑自旋轨道耦合的情况下，3Q 自旋结构的 $\gamma\text{-Fe}_{0.5}\text{Mn}_{0.5}$ 的能带结构也是自旋二度简并的，然而磁光效应可以出现。也就是说，非共面反铁磁 $\gamma\text{-Fe}_{0.5}\text{Mn}_{0.5}$ 中的磁光效应并不依赖于自旋轨道耦合和能带交换劈裂。如果考虑自旋轨道耦合，能带会发生自旋劈裂，但是

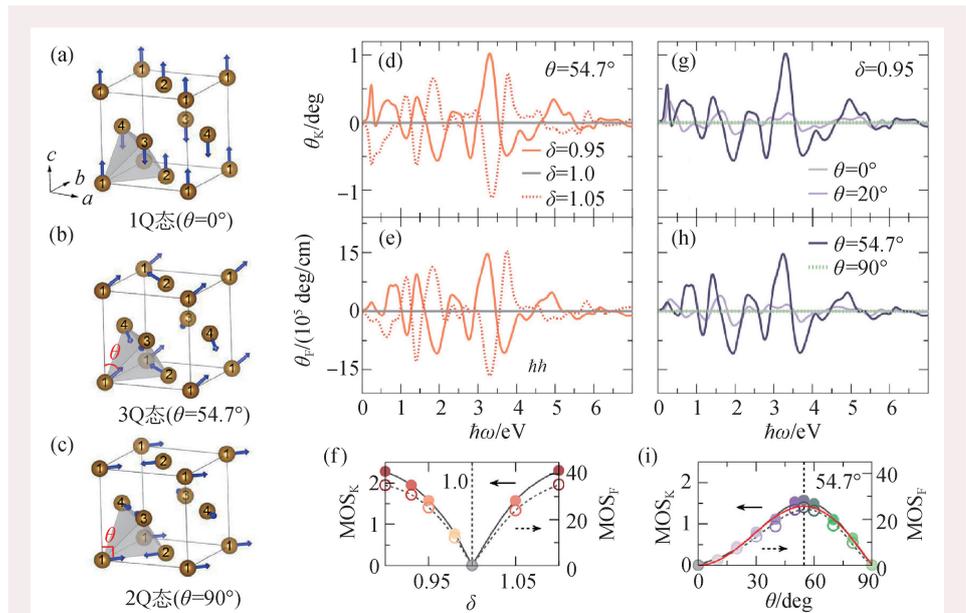


图 8 (a—c) $\gamma\text{-Fe}_x\text{Mn}_{1-x}$ 的 1Q 态、3Q 态、2Q 态自旋结构，角度 θ 描述不同的自旋结构，即原子 1、2 和原子 3、4 的自旋分别在 $(1\bar{1}0)$ 平面和 (110) 平面上的旋转；(d—f) 3Q 态自旋结构的 $\gamma\text{-Fe}_{0.5}\text{Mn}_{0.5}$ 在不同应变下的磁光克尔角、磁光法拉第角和磁光强度；(g—i) 应变 $\delta=0.95$ 的 $\gamma\text{-Fe}_{0.5}\text{Mn}_{0.5}$ 在不同自旋转角 θ 下的磁光克尔角、磁光法拉第角和磁光强度(MOS)，(i) 中的红线代表标量自旋手性与自旋转角的依赖关系，即 $\chi(\theta) \propto \cos\theta \sin^2\theta$ ^[16]

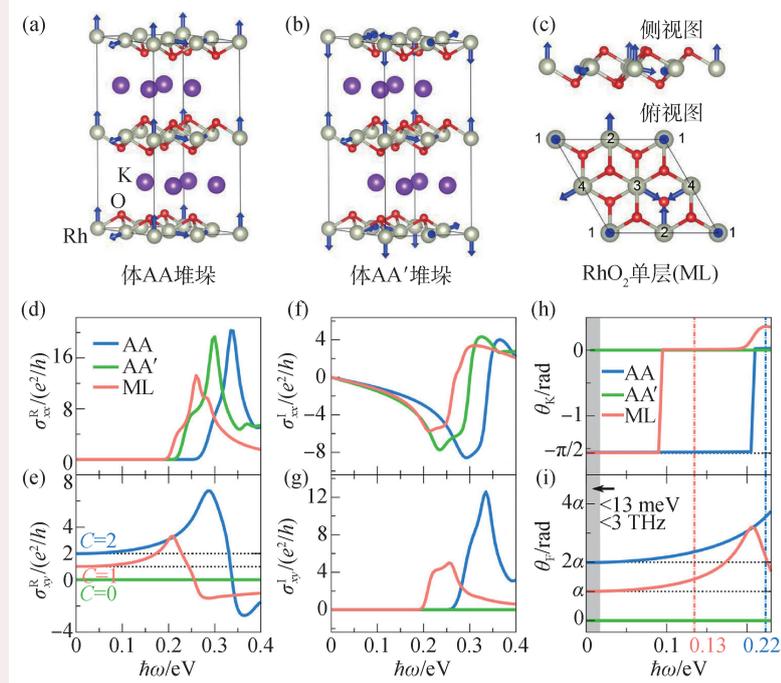


图9 (a), (b)AA 和 AA' 堆垛方式的 $K_{0.5}RhO_2$ 体材料的晶体和磁结构; (c) 单层 RhO_2 的晶体和磁结构; (d—g) 体结构 $K_{0.5}RhO_2$ 和单层 RhO_2 的光电导率; (h), (i) 体结构 $K_{0.5}RhO_2$ 和单层 RhO_2 的磁光克尔和法拉第旋转角, 竖虚线表示带隙, 阴影区域表示量子拓扑磁光效应出现的低频区域^[16]

磁光谱几乎不发生变化。这说明非共面反铁磁 $\gamma-Fe_{0.5}Mn_{0.5}$ 的磁光效应完全来源于标量自旋手性, 与传统的磁光效应完全不同。为了更加清晰地看到标量自旋手性的作用, 图 8(g), (h) 给出了不同自旋结构下的磁光谱。显然, 对于自旋共线的 1Q 态 ($\theta = 0^\circ$) 和 2Q 态 ($\theta = 90^\circ$), 由于没有标量自旋手性, 所以磁光效应会消失; 当自旋旋转到非共面结构时 ($0^\circ < \theta < 90^\circ$), 标量自旋手性出现, 进而诱发了磁光效应; 特别地, 对于 3Q 态 ($\theta = 54.7^\circ$), 标量自旋手性达到最大值, 磁光效应也变得最强。图 8(i) 画出了 $\gamma-Fe_{0.5}Mn_{0.5}$ 的磁光强度随着自旋转角 θ 的变化情况, 由于标量自旋手性正比于 θ , 即 $\chi(\theta) \propto \cos \theta \sin^2 \theta$, 那么拓扑磁光效应也正比于标量自旋手性 χ 。为了区分拓扑磁光与普通磁光效应, 文献[16]提出了三个谱积分公式,

$$SI^{(1)} = \int_0^\infty \sigma_{xy}^R(\omega) d\omega \approx K_R \chi(\theta), \quad (8)$$

$$SI^{(2)} = \int_0^\infty \theta_K(\omega) d\omega \approx K_K \chi(\theta), \quad (9)$$

$$SI^{(3)} = \int_0^\infty \theta_F(\omega) d\omega \approx K_F \chi(\theta). \quad (10)$$

非共面反铁磁 $\gamma-Fe_{0.5}Mn_{0.5}$ 的谱积分正比于标量自旋手性, 即 $SI^{(1,2,3)} \propto \chi(\theta)$; 而传统铁磁材料的谱积分正比于磁晶各向异性性能。

另一类非共面反铁磁 K_xRhO_2 具有 $\gamma-Na_xCoO_2$ 型的晶体结构, 由两个 RhO_2 单层和两个 K 离子层沿着晶体 z 轴叠堆而成, 每个 RhO_2 单层(图 9(c))都是 3Q 态非共面反铁磁体。当 $x=0.5$ 时, $Rh^{3.5+}$ ($4d^{5.5}$) 的 a_{1g} 轨道正好填充到 3/4, 会出现拓扑非平庸的能隙^[30]。由于每个 RhO_2 单层的陈数 $C=1$, 当两层 RhO_2 具有完全相同的自旋结构 (AA 堆垛, 图 9(a)) 时, $K_{0.5}RhO_2$ 的陈数 $C=2$; 而当两层 RhO_2 具有完全相反的自旋结构 (AA' 堆垛, 图 9(b)) 时, $K_{0.5}RhO_2$ 的陈数 $C=0$ 。在不考虑自旋轨道耦合的情况下, 尽管能带是自旋二度简并的, 单层 RhO_2 和 AA 堆垛的

$K_{0.5}RhO_2$ 体结构依然可以出现非零的磁光效应, 即拓扑磁光效应。更有趣的是, 光电导率在低频极限下满足 $\sigma_{xx}^R = 0, \sigma_{xx}^I = 0, \sigma_{xy}^R = Ce^2/h, \sigma_{xy}^I = 0$ (上标 R 和 I 分别代表实部和虚部), 如图 9(d)—(g) 所示。根据量子磁光效应的公式^[31—33],

$$\theta_K = -\tan^{-1} \left[\frac{c}{2\pi\sigma_{xy}^R} \right] = -\tan^{-1} \left[\frac{1}{C\alpha} \right] \approx -\frac{\pi}{2}, \quad (11)$$

$$\theta_F = \tan^{-1} \left[\frac{2\pi\sigma_{xy}^R}{c} \right] = \tan(C\alpha) \approx C\alpha, \quad (12)$$

其中 c 是真空光速, α 是精细结构常数。可知, 单层 RhO_2 和 AA 堆垛的 $K_{0.5}RhO_2$ 体结构的磁光克尔和法拉第旋转角都可以出现量子化的平台, 即量子拓扑磁光效应(图 9(h), (i))。

4 晶体手性磁光效应

除了以上提及的突破性进展, 人们或许会问磁光效应还能有其他新的发现吗? 事实上, 过去

人们一直关注晶格中磁性原子对磁光效应的贡献，而忽略了非磁性原子的影响。在磁性材料中，非磁性原子的位置变化可以引入晶体结构的手性。例如，共线反铁磁 RuO_2 和 MF_2 ($M = \text{Mn}, \text{Ni}$) 具有局域晶体手性^[34]，而共线反铁磁 XNb_3S_6 ($X = \text{V}, \text{Cr}, \text{Mn}, \text{Fe}, \text{Co}, \text{Ni}$) 和 SrRuO_3 具有全局晶体手性^[34]。下面以 RuO_2 和 XNb_3S_6 为例阐述晶体手性如何影响磁光效应^[17]。

RuO_2 具有金红石晶体结构，最近被发现是室温下的共线反铁磁金属^[35]。两个磁性的 Ru 原子具有相反的自旋取向，且分别占据四方晶格的顶角和中心；每个 Ru 原子由 6 个最近邻的 O 原子围绕成八面体结构。因为存在关于 Ru 原子的中心反演对称性，所以 RuO_2 不是严格意义上的手性晶体。但是由于 O 原子位置处不存在反演中心，仍然可以定义所谓的局域晶体手性矢量，即 $\xi = \mathbf{d}_{\text{Ru1O}} \times \mathbf{d}_{\text{ORu2}}$ (\mathbf{d}_{Ru1O} 和 \mathbf{d}_{ORu2} 是 O 原子与两个最近邻 Ru 原子相连接的单位矢量)。显然， RuO_2 具有两种相反的手性晶体结构，左手性 $\xi = -1$ 和右手性 $\xi = +1$ ，如图 10(a), (b) 所示。对比左手性和右手性晶体结构可以发现，磁性原子的位置和奈尔矢量的方向均未发生变化，唯一变化的是 O 原子八面体旋转了 90°

(空间群不变)。两种手性晶体结构的磁光效应在绝对数值上相等，然而符号相反(图 10(c), (d))。其背后的物理是：两种手性晶体结构是由联合对称操作 $Tt_{1/2}$ 相联系的，其中 $t_{1/2} = (0.5, 0.5, 0.5)$ 是沿着体对角线平移半个晶格；平移操作 $t_{1/2}$ 不影响磁光谱，而时间反演操作 T 可以反转磁光谱的符号，故 $Tt_{1/2}$ 改变了磁光谱的符号。 CoNb_3S_6 是另一类共线反铁磁，由于其不存在任何的空间反演中心，故具有全局的晶体手性。图 10(e), (f) 显示了 CoNb_3S_6 的晶体和磁结构，左手性和右手性晶体结构由镜面 M_x 相联系，当然也会改变磁光谱的符号，如图 10(g), (h) 所示。

另一个的研究发现是，晶体手性磁光效应与磁晶各向异性性能(MAE)和轨道磁矩(M_{orb})密切相关^[17]。由于磁光谱是频率依赖的物理量，所以需要使用时积分(公式(9)和(10))来描述其整体变化趋势。这里用磁光克尔效应为例来讨论此问题，磁光法拉第效应具有相同的物理结果。当奈尔矢量 \mathbf{n} 在(100)平面旋转时，磁光克尔谱积分只有 x 方向的分量(SI_k^x)不为零，且周期是 2π (图 11(a))。因为不同晶体手性的克尔角具有相反的符号，所以不同晶体手性的 SI_k^x 也是符号相反的。不同晶

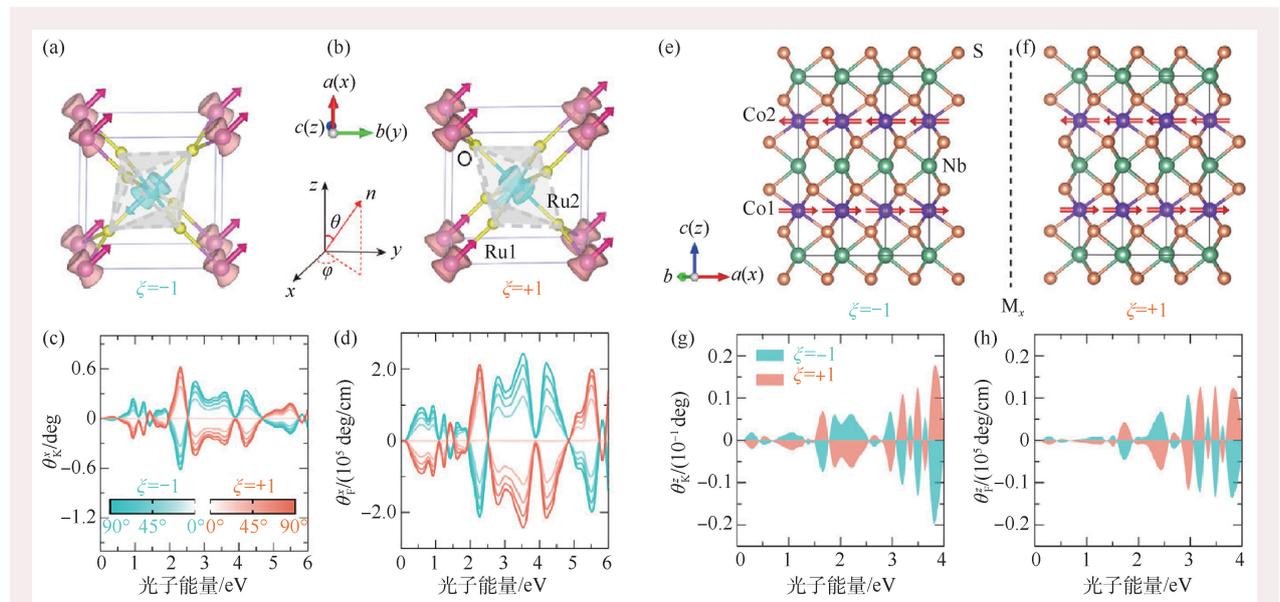


图 10 (a), (b) 共线反铁磁 RuO_2 的左手性、右手性晶体结构，粉色和青色箭头代表 Ru 原子上的自旋磁矩；(c), (d) 奈尔矢量在 xy 平面旋转时的磁光克尔和法拉第旋转角；(e), (f) 共线反铁磁 CoNb_3S_6 的左手性、右手性晶体结构；(g), (h) 共线反铁磁 CoNb_3S_6 的磁光克尔和法拉第旋转角^[17]

体手性的磁晶各向异性是完全相同的(能量简并),且周期是 π 。当然,谱积分的绝对值 $|SI_k^x|$ 与磁晶各向异性成正比。当奈尔矢量 \mathbf{n} 在(010)平面旋转时,磁光克尔谱积分只有 y 方向的分量(SI_k^y)不为零,周期也是 2π (图11(b));当 \mathbf{n} 在(001)平面旋转时, SI_k^x 和 SI_k^y 都存在且周期是 2π (图11(c)),但是磁晶各向异性的周期是 $\pi/2$ 。此时,如果重新定义谱积分为 $SI_k^z = \int_0^\infty \sqrt{\sum_{i=x,y} [\theta_k^i(\omega)]^2} d\omega$,那么谱积分的周期就是 π ,且 $|SI_k^z|$ 与磁晶各向异性仍然是成正比的(图11(d))。由图11(a)—(d)看出,可以利用晶体手性磁光效应的大小和符号来探测反铁磁奈尔矢量的方向和结构晶体的手性。图11(e)—(g)显示轨道磁矩的分量具有与谱积分相同的对称性要求,然而轨道磁矩的大小与磁晶各向异性具有相同的特征。例如,当奈尔矢量 \mathbf{n} 在(100)和(010)平面旋转时,轨道磁矩的 x 和 y 分量(M_{orb}^x 和 M_{orb}^y)分别不为零;奈尔矢量 \mathbf{n} 在(001)平面旋转时, M_{orb}^x 和 M_{orb}^y 都不为零;晶体手性相反情况下的轨道磁矩具有相反符号;轨道磁矩的大小($|M_{orb}|$)与磁晶各向异性类似,在(100)和

(010)平面上的周期是 π ,而在(001)平面上的周期是 $\pi/2$ 。磁光效应谱积分与磁晶各向异性和轨道磁矩均成正比,

$$|SI| \propto |M_{orb}| \propto MAE$$

这种物理关系在反铁磁中还是首次被发现。

5 总结与展望

磁光效应是凝聚态物理学中非常古老的物理现象之一,不仅有丰富的基础物理研究内容,在磁性探测和磁光器件等方面也有重要的实际应用价值。本文总结了近年来磁光效应研究领域中的三项最新研究进展。首先,磁光效应被发现可以在反铁磁材料中出现,尽管反铁磁的净磁化强度为零。这打破了以往人们对于磁光效应只能出现在净磁化强度非零的铁磁或亚铁磁中的传统印象。其次,在非共面反铁磁中发现了起源于标量自旋手性的拓扑磁光效应及其量子化现象,与传统磁光效应的物理起源——能带交换劈裂和自旋轨道耦合——完全不同。再次,磁性材料的非磁性原子位置变化可以带来晶体结构的手性,而晶体手性对磁光效应的符号有着重要的影响。晶体

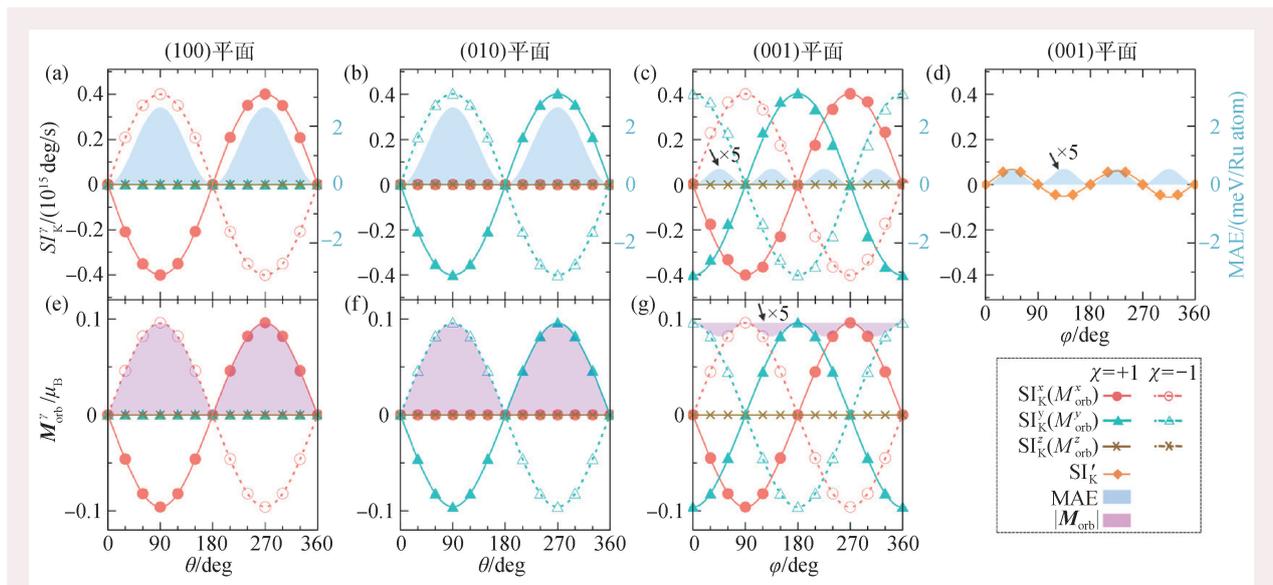


图11 (a)—(d)共线反铁磁RuO₂中磁光克尔效应的谱积分随着奈尔矢量在(100)、(010)、(001)平面上旋转时的变化,蓝色阴影代表磁晶各向异性; (e)—(g)共线反铁磁RuO₂的轨道磁矩随着奈尔矢量在(100)、(010)、(001)平面上旋转时的变化,粉色阴影代表轨道磁矩的绝对值大小^[17]

手性磁光效应也是磁光效应家族的新成员。这些新的研究进展丰富了人们对磁光效应物理起源和实际应用的理解,使磁光效应这个古老的研究领域焕发了新的生机。

最后,我们展望磁光效应领域在未来可能出现的一些研究进展。第一,反铁磁磁光器件的深入发展。由于反铁磁具有微弱退磁场、快速自旋动力学、不敏感于外磁场微扰等优点,反铁磁自旋电子学器件已经得到了很多关注。反铁磁的这些优点同样也有利于各种磁光器件,例如隔离器、循环器、调制器、传感器和数据存储媒介等。反铁磁中可存在磁光效应的研究发现扩展了磁光器件的可选材料范围,将推动反铁磁磁光器件的深入发展。第二,高阶拓扑磁光效应的理论和实验研究。磁光克尔和法拉第效应都是线性磁光效应,其物理起源可以是标量自旋手性,即拓

扑磁光效应。然而,拓扑磁光效应还可以推广到高阶情况,例如二阶磁场下的沃伊特(Voigt)效应和二阶电场下的非线性克尔效应。理论预言和实验测量需要紧密合作,将拓扑磁光效应的研究内容从一阶线性推广到高阶非线性情况,以更加全面地理解拓扑光与物质相互作用。第三,将磁光效应用于对自旋手性和晶体手性的探测。手性在自然界中是广泛存在的,但是对其准确的测量却并不容易。自旋手性定义了不同的非共线磁结构,而晶体手性可以描述不同的晶体结构(尽管原子种类、数量以及晶体结构的晶格群都相同)。最新的研究表明不同自旋手性或不同晶体手性的磁光效应显著不同,即磁光效应可以作为一种特殊的指纹,用于探测微观原子世界中的自旋手性和晶体手性。

参考文献

- [1] Faraday M. *Philos. Trans. R. Soc. Lond.*, 1846, 136: 1
- [2] Kerr J. *Phil. Mag.*, 1877, 3: 321
- [3] McCord J. *J. Phys. D*, 2015, 48: 333001
- [4] Higo T, Man H Y, Gopman D B *et al.* *Nat. Photonics*, 2018, 12: 73
- [5] Allwood D A, Xiong G, Cooke M D. *J. Phys. D*, 2003, 36: 2175
- [6] Kirilyuk A, Kimel A V, Rasing T. *Rev. Mod. Phys.*, 2010, 82: 2731
- [7] Huang B *et al.* *Nature*, 2017, 546: 270
- [8] Gong C *et al.* *Nature*, 2017, 546: 265
- [9] Reim W, Schoenes J. *Handbook of Magnetic Materials*, Vol.5, Chap.2. New York: Elsevier, 1990
- [10] Mansuripur M. *The Physical Principles of Magneto-optical Recording*. New York: Cambridge University Press, 1995
- [11] Ebert H. *Rep. Prog. Phys.*, 1996, 59: 1665
- [12] Antonov V, Harmon B, Yaresko A. *Electronic Structure and Magneto-Optical Properties of Solids*, Chap.1.4. Dordrecht: Kluwer Academic, 2004
- [13] Kuch W, Schafer R, Fischer P *et al.* *Magnetic Microscopy of Layered Structures*, Chap.2. Springer-Verlag Berlin Heidelberg, 2015
- [14] Argyres P N. *Phys. Rev.*, 1955, 97: 334
- [15] Feng W, Guo G Y, Zhou J *et al.* *Phys. Rev. B*, 2015, 92: 144426
- [16] Feng W, Hanke J P, Zhou X *et al.* *Nat. Commun.*, 2020, 11: 118
- [17] Zhou X, Feng W, Yang X *et al.* *Phys. Rev. B*, 2021, 104: 024401
- [18] Zhou X, Hanke J P, Feng W *et al.* *Phys. Rev. B*, 2019, 99: 104428
- [19] Guo G Y, Wang T C. *Phys. Rev. B*, 2017, 96: 224415
- [20] Guo G Y, Ebert H. *Phys. Rev. B*, 1994, 50: 10377
- [21] Guo G Y, Ebert H. *Phys. Rev. B*, 1995, 51: 12633
- [22] Balk A L, Sung N H, Thomas S M *et al.* *Appl. Phys. Lett.*, 2019, 114: 032401
- [23] Wu M, Isshiki H, Chen T *et al.* *Appl. Phys. Lett.*, 2020, 116: 132408
- [24] Bertaut E F, Fruchart D, Bouchaud J P *et al.* *Solid State Commun.*, 1968, 6: 251
- [25] Fruchart D, Bertaut E F. *J. Phys. Soc. Jpn.*, 1978, 44: 781
- [26] Gomonaj E V. *Phase Trans.*, 1989, 18: 93
- [27] Gomonaj E V, L'vov V A. *Phase Trans.*, 1992, 38: 15
- [28] Sivadas N, Okamoto S, Xiao D. *Phys. Rev. Lett.*, 2016, 117: 267203
- [29] Fan F R, Wu H, Nabok D *et al.* *J. Am. Chem. Soc.*, 2017, 139: 12883
- [30] Zhou J, Liang Q F, Weng H *et al.* *Phys. Rev. Lett.*, 2016, 116: 256601
- [31] Tse W K, MacDonald A H. *Phys. Rev. Lett.*, 2010, 105: 057401
- [32] Tse W K, MacDonald A H. *Phys. Rev. B*, 2011, 84: 205327
- [33] Maciejko J, Qi X L, Drew H D *et al.* *Phys. Rev. Lett.*, 2010, 105: 166803
- [34] Smejkal L, Gonzalez-Hernandez R, Jungwirth T *et al.* *Sci. Adv.*, 2020, 6: eaaz8809
- [35] Zhu Z H, Stremper J, Rao R R *et al.* *Phys. Rev. Lett.*, 2019, 122: 017202