

缓慢的铁磁波动在蜂巢金属钪₃锰₃铝₇硅₅中通过²⁷Al核磁共振揭示出来

Qing-Ping Ding,¹ Charles Taylor,^{1,2} Yongbin Lee,¹ Charuni Dissanayake,^{3,*} Vireshwar Mishra,^{4,†} Dang Khoa Le,⁴ Manh-Huong Phan,⁴ Yasuyuki Nakajima,³ and Yuji Furukawa^{1,2}

¹Ames National Laboratory, U.S. DOE, Ames, Iowa 50011, USA

²Department of Physics and Astronomy, Iowa State University, Ames, Iowa 50011, USA

³Department of Physics, University of Central Florida, Orlando, Florida 32816, USA

⁴Department of Physics, University of South Florida, Tampa, Florida 33620, USA

(10Dated: 2025 年 4 月 30 日)

静态和动态磁性和电子性质的雪花金属 Sc₃Mn₃Al₇Si₅ 已经通过 ²⁷Al 核磁共振 (NMR) 测量进行了研究。温度依赖的 Knight 移位 (K) 展现了与直流磁化率 χ 类似的温度依赖性, 除了在低于 ~ 50 K 的低温区域中, K 几乎保持恒定而 χ 持续增加, 这表明低温下 χ 的增加并非固有。²⁷Al 自旋晶格弛豫率除以温度 ($1/T_1T$) 被发现是恒定的, 从微观角度看这证实了 Sc₃Mn₃Al₇Si₅ 的金属性状态。基于使用 T_1 和 K 数据的 Korringa 比率分析, 发现铁磁自旋涨落在 Sc₃Mn₃Al₇Si₅ 中占主导地位。这些涨落被认为是极其缓慢的, 频率约为千赫兹或更低。

最近人们对具有 Kagome 格子结构的金属产生了越来越多的兴趣, 主要是因为可能源自扁平带结构 [1] 的拓扑非平凡电子态。RM₆Sn₆ 系统中, R 代表稀土元素而 M 指的是 $3d$ 过渡金属 (所谓的 166- Kagome 金属) 是相对研究较多的 Kagome 金属之一 [2]。在基于 Mn 的 166 化合物中, 其铁磁态下的 TbMn₆Sn₆ [3–6] 被指出存在自旋极化狄拉克锥、异常霍尔效应和陈数拓扑磁性。在考虑自旋轨道耦合和平面外铁磁性的情况下, 特别是在有隙狄拉克锥内的无色散电子边缘状态也被提出 [6]。用非磁性的 V 离子替代磁性的 Mn 离子后, 在 ScV₆Sn₆ [7] 中报道了电荷密度波 (CDW) 相, 而在 GdV₆Sn₆ [8] 中, 低于 5 K 时出现了铁磁有序态。诸如超导性、CDWs (电荷密度波)、配对密度波和电子斜方相等有趣的现象, 也在另一类 kagome 金属 AV₃Sb₅ ($A = K, Rb, Cs$) [9–11] 中被观察到。这些发现使得 kagome 金属成为探索各种有趣物理特性的多功能平台。

最近, 一种基于锰的 Kagome 金属 Sc₃Mn₃Al₇Si₅ 被报道位于源自扁平带的铁磁不稳定性附近, 这是 Kagome 金属的一个特征属性 [12]。Sc₃Mn₃Al₇Si₅ 在六方结构中结晶 (空间群: P6₃/mmc), 晶格参数为 $a=b=$

8.3519(2) Å 和 $c=9.0845(4)$ Å 在 $T=299$ K [13]。这是一个罕见的金属 Kagome 系统实例, 其中 Mn 离子形成了被 Si 和 Sc 离子隔开的二维 Kagome 层, 如图所示 1。存在六个独特的晶体学位置: Sc (6h), Mn (6g), Al1 (12k), Al2 (2b), Si1 (6h) 和 Si2 (4f), 括号中的数字代表每个原子的 Wyckoff 位置。该化合物的金属性通过其电阻率随温度的变化 (T) 得到了确认。在 1.8 K 以下未观察到磁有序 [13]。从比热测量中报道了一个相对较大的 Sommerfeld 系数, 为 57-80 mJ/mol K² [13, 14], 表明电子关联性很强。最初, 静态磁化率 χ 被报告为各向同性, 并且在 ~ 50 K 以上遵循居里 - 外斯 (CW) 定律, 有效磁矩 μ_{eff} 为 $0.51\mu_B/\text{Mn}$, 负的外斯温度 θ 为 -38 K [13]。另一方面, Samanta 等人的较新研究表明报告了轻微的各向异性 χ 和相对不同的值 μ_{eff} 为 0.86 (0.87) μ_B/Mn 及 θ 为 -421 (-369) K 对于磁场 H 平行于 ab 面 (c 轴) [12]。此外, 尽管存在

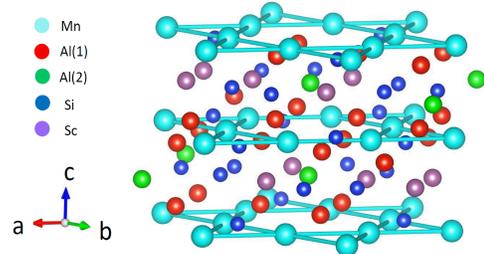


图 1. 钪₃锰₃铝₇硅₅ 晶体结构的示意图。注意硅原子用蓝色圆圈表示, 未显示两个不同的硅位点 6h 和 4f。

* Present address: National High Magnetic Field Laboratory, Florida State University, Tallahassee, FL 32310

† Present address: Department of Physics, Morgan State University, Richard N. Dixon Science Research Center, Baltimore, Maryland 21251, USA

反铁磁负魏斯温度，Samanta 等人根据低温下 χ 的增加以及 ^{27}Al 核磁共振 (NMR)、输运和光学电导率测量 [12] 提出了铁磁波动。

在本文中，我们报告了 ^{27}Al 核磁共振对 $\text{Sc}_3\text{Mn}_3\text{Al}_7\text{Si}_5$ 的详细研究。观察到了来自 Al(1) 和 Al(2) 位点的两个不同的 ^{27}Al 核磁共振信号。基于 Knight 移位 (K)、核自旋晶格弛豫率 ($1/T_1$) 和核自旋-自旋弛豫率 ($1/T_2$) 在 Al(1) 位置的结果，在低温下发现 $\text{Sc}_3\text{Mn}_3\text{Al}_7\text{Si}_5$ 中存在非常缓慢的铁磁自旋涨落。我们的工作表明，这类缓慢的铁磁波动在 $\text{Sc}_3\text{Mn}_3\text{Al}_7\text{Si}_5$ 中的特殊磁性和电子状态中起着重要作用。

棒状单晶 (具有六边形截面) $\text{Sc}_3\text{Mn}_3\text{Al}_7\text{Si}_5$ 是从高温溶液 [13] 中生长出来的。晶体的 c 轴和平面 ab 分别与晶棒的方向平行和垂直。核磁共振测量了 ^{27}Al ($I=5/2$, $\frac{\gamma_N}{2\pi} = 11.0943 \text{ MHz/T}$, $Q=0.149$ 巴恩) 核, 使用了实验室自制的相位相干自旋回波脉冲光谱仪。通过在固定频率下扫描 H 获得了核磁共振光谱。 H 被平行应用于晶体的 c 轴 ($H \parallel c$) 或 ab 平面 ($H \parallel ab$)。对于在最低温度为 1.7K 的 T 下对 $H \parallel c$ 和 4.3K 下对 $H \parallel ab$ 的核磁共振光谱测量, 我们仅使用一个单晶。对于高 T 测量, 我们使用了几块对齐的晶体来增加信号强度。 ^{27}Al $1/T_1$ 使用饱和和恢复方法进行测量。 $1/T_1$ 在每个 T 是通过拟合核磁化率 M 随时间 t 的变化使用指数函数 $1 - M(t)/M(\infty) = 0.028e^{-t/T_1} + 0.178e^{-6t/T_1} + 0.794e^{-15t/T_1}$ 确定的, 其中 $M(t)$ 和 $M(\infty)$ 分别是在饱和后时间 t 时的核磁化率和在 $t \rightarrow \infty$ 处的平衡核磁化率, 在磁弛豫 [15] 的情况下。所有测量的核磁化恢复曲线都很好地拟合了该函数。核自旋-自旋弛豫时间 T_2 是通过使用以下方程拟合自旋回波衰减曲线来确定的: $M(2\tau) = M(0) \exp[-(\frac{2\tau}{T_2})^\beta]$, 其中 τ 是 $\pi/2$ 和 π 脉冲之间的时间。在 100 K 以上, 观察到了具有 $\beta \approx 2$ 的高斯衰减行为。随着 T 的减小, β 下降到低于 100 K, 并在约 7 K 时变为 ≈ 1 , 然后增加到 ~ 1.5 , 在较低的 T 时。对于 NMR 数据的分析, 我们在商用量子设计物理性质测量系统 (PPMS) 中使用振动样品磁强计测量了单晶在磁场 $\mu_0 H = 7.4 \text{ T}$ 沿 c 轴和平行于 ab 平面方向下的磁化率 $\chi(T)$, 并发现所观测到的 $\chi(T)$ 曲线几乎是各向同性的, 这与之前的报道 [13] 一致。

图 2(a) 显示了在 1.7 K 时 $H \parallel c$ 轴的 H -扫描 ^{27}Al NMR 光谱, 在其中观察到了两组不同强度的 ^{27}Al

NMR 线。具有自旋 $I = 5/2$ 的核在塞曼和四极相互作用下的典型光谱可以通过以下核自旋哈密顿量 [16] 来描述, 该哈密顿量产生一个中心跃迁线被两侧的两条卫星线环绕的光谱。

$$\mathcal{H} = -\gamma_N \hbar (1 + K) \mathbf{H} \cdot \mathbf{I} + \frac{h\nu_Q}{6} (3I_z^2 - I^2 + \frac{1}{2}\eta(I_+^2 + I_-^2))$$

其中 H 是外部场, \hbar 是普朗克常数 (h) 除以 2π , K 代表 NMR 移位。第一项和第二项分别表示塞曼相互作用和四极相互作用。 $I = 5/2$ 核的核四极频率由 $\nu_Q = 3eQV_{ZZ}/20\hbar$ 给出, 其中 Q 是核四极矩, V_{ZZ} 是核位点处的最大电场梯度 (EFG)。 η 是 EFG 的不对称参数, 由 $\frac{V_{XX} - V_{YY}}{V_{ZZ}}$ 定义, 并且 $|V_{ZZ}| \geq |V_{YY}| \geq |V_{XX}|$ 。在这种情况下, 从 $I_z = m$ 到 $m - 1$ 的跃迁的共振频率 f 在一阶微扰理论中由 [17]

$$f(m \leftrightarrow m - 1) = f_0 + \frac{1}{2}\nu_Q(m - \frac{1}{2})(3\cos^2\theta - 1 + \eta\sin^2\theta\cos 2\phi).$$

给出。这里 $f_0 = \frac{\gamma_N}{2\pi} H$, 以及 θ 和 ϕ 分别是 EFG 的 Z 轴与 H 方向之间的极角和方位角, 在这里用于塞曼相互作用的量子化轴 (z 轴) 沿着 H 方向。因此, 核磁共振谱图, 特别是线条之间的间距, 取决于角度 θ 和 ϕ 以及 ν_Q 和 η 。如上所述, 存在两个铝位点 [Al(1) 和 Al(2)], 并且在 Al(1) 和 Al(2) 处的局部对称性为 .m. 并且分别为 $\bar{6}$ 平方米, 在 $\text{Sc}_3\text{Mn}_3\text{Al}_7\text{Si}_5$ [13] 中。这意味着 Al(2) 点位绕 c 轴存在一个 6 次旋反轴, 导致 $\eta = 0$, 并且 V_{ZZ} 平行于 Al(2) 的 c 轴。相比之下, 由于 Al(1) 的局部对称性为 .m., EFG 主轴的方向并不简单。因此, 为了获得关于 η 和 ν_Q 的值以及 Al(1) 位点 EFG 的主轴信息, 以及 Al(2) 的 ν_Q 值, 我们通过全势线性扩局平面波 (FLAPW) 方法 [18] 并使用广义梯度近似 [19] 计算了每个 Al 位点的 EFG, 所用的晶格参数在引言中进行了描述。 ν_Q 的值分别计算为 1.56 MHz 和 1.01 MHz 对于 Al(1) 和 Al(2)。我们还从计算中发现, V_{ZZ} 与 c 轴平行, 并且 η 对于 Al(2) 站点而言为零, 这与 Al(2) 站点的局部对称性相符。对于 Al(1) 位点, V_{ZZ} 计算为与 $\langle 210 \rangle$ (即垂直于 a 轴) 平行, 且 $\eta = 0.66$, 并且 V_{XX} 的主轴在 ac 平面内从 c 轴旋转了 37° , 如图 2(e) 所示。

首先, 我们考虑信号强度来分配这些线条。由于 Wyckoff 位置分别为 Al(1) 的 12k 和 Al(2) 的 2b, 因此认为来自 Al(1) 的 NMR 信号强度是 Al(2) 的六倍。因

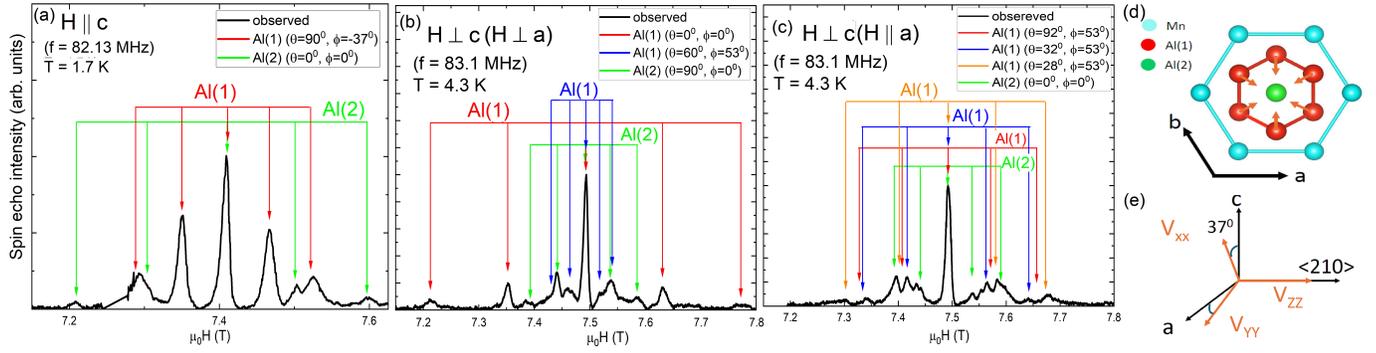


图 2. (a) $H \parallel c$ 扫描的 ^{27}Al 核磁共振谱, 对 $H \parallel c$ 在 1.7 K 和 $f = 82.13$ MHz 下测量。红色和绿色线条是使用 $\nu_Q = 1.55(2)$ MHz, $\eta = 0.66$, $\theta = 90^\circ$, 和 $\phi = 37^\circ$ 计算的 ^{27}Al -NMR 谱图的位置, 分别对应于 Al(1) 和使用 $\nu_Q = 1.07(2)$ MHz, $\eta = 0$, $\theta = 0^\circ$, 和 $\phi = 0^\circ$ 的 Al(2)。 (b) H -swept ^{27}Al -NMR 谱图对于 $H \perp c$ (和 $H \perp a$) 在 4.3 K 和 $f = 83.1$ MHz 时的情况。红色 (蓝色) 线是通过计算得到的 Al(1) NMR 谱的位置, 其中 $\theta = 0^\circ$ (60°) 和 $\phi = 0^\circ$ (53°), 并且具有相同的值 $\nu_Q = 1.55(2)$ MHz, $\eta = 0.66$ 。 (c) H -扫描的 ^{27}Al -NMR 谱图对于 $H \perp c$ (以及 $H \parallel a$) 在 4.3 K 和 $f = 83.1$ MHz 的情况。 (b) 和 (c) 中的绿线代表 $\nu_Q = 1.07(2)$ MHz, $\eta = 0$, $\theta = 90^\circ$, 和 $\phi = 0^\circ$ 的 Al(2) 的 NMR 线位置。 (c) 中的其他线是模拟光谱 (详情见正文)。 (d) Mn 离子 (青色) 构成的三角形晶格的俯视图, 包含 Al(1) (红色) 和 Al(2) (绿色)。 Al(1) 上的箭头代表三个非等效 Al(1) 位点的 V_{ZZ} 的主轴。 (e) NMR 测量和电子能带结构计算确定的 EFG 主轴相对于晶格轴的方向示意图。

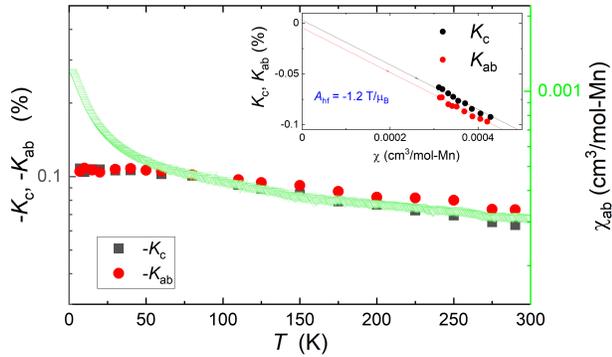


图 3. T Knight 移位 K_c 和 K_{ab} 的依赖关系以及在 7.4 T 下测量的 T 对 χ_{ab} (绿色圆圈) 的依赖关系。请注意, Knight 移位数据是以对数尺度绘制的 $-K_c$ 和 $-K_{ab}$ 。插图显示了 K - χ 图表对于 K_c 和 K_{ab} 相对于相应的 χ 的情况。

此, 具有较低强度的核磁共振线条被分配给 Al(2), 并很好地由一组参数解释: $\nu_Q = 1.07(2)$ MHz, $\eta = 0$, $\theta = 0^\circ$ 和 $\phi = 0^\circ$, 如图 2(a) 中的绿色线条所示, 这与计算结果 $\nu_Q = 1.01$ MHz 非常吻合。对于 Al(1), 我们也发现观测到的核磁共振线可以用参数 $\nu_Q = 1.55(2)$ MHz, $\eta = 0.66$, $\theta = 90^\circ$, 和 $\phi = 37^\circ$ 很好地再现, 如图 2(a) 中的红线所示, 与计算结果非常吻合。

我们通过测量在不同 H 方向下的 ^{27}Al 核磁共振谱确认了 Al(1) 处的 EFG 方向。当在 ab 平面中应用 H

并且与 a 轴垂直时, 可以预期 Al(1) NMR 线将分裂成两组线, 对应于角度 $(\theta, \phi) = (0^\circ, 0^\circ)$ 和 $(60^\circ, 53^\circ)$, 这是由于三个不等效的 Al(1) 位点与 H 和 V_{ZZ} 轴之间的相对角度, 如图 2(d) 所示。事实上, 如图 2(b) 所示, 在 $H \perp a$ (以及 $H \perp c$) 下的观测光谱可以通过来自 Al(1) 的红色和蓝色线条所表示的两组 NMR 线很好地解释, 其值分别为 $(\theta, \phi) = (0^\circ, 0^\circ)$ 和 $(60^\circ, 53^\circ)$, 并且具有相同的值 $\nu_Q = 1.55(2)$ MHz, $\eta = 0.66$, 如图 2(a) 中所用。此外, Al(2) 线也通过绿色线条所示的光谱计算很好地重现了, 其中 $\theta = 90^\circ$, 并且 $\nu_Q = 1.07(2)$ MHz, $\eta = 0$ 。

为了进一步确认, 我们测量了在 $H \parallel a$ (和 $H \perp c$) 下的 ^{27}Al 核磁共振光谱, 如图 2(c) 所示。在这种情况下, 可以预期由于 $\theta = 90^\circ$ 和 30° 的两个不同值而导致的 Al(1) 的两组核磁共振光谱 [见图 2(d)]。尽管我们在实验中发现 H 方向偏离了 a 轴, 但通过考虑取向差, 观察到的光谱与红色、橙色和蓝色线条所示的计算结果合理一致, 这些线条分别对应不同的 (θ, ϕ) 值: $(92^\circ, 53^\circ)$, $(32^\circ, 53^\circ)$ 和 $(28^\circ, 53^\circ)$ 。请注意, 绿色线条是用于 Al(2) 在 $H \perp a$ 情况下 (也包括 $H \perp c$) 参数完全相同的情形 [图 2(b)]。需要注意的是, 我们通过完全对角化核自旋哈密顿量 [方程 (1)] 来计算谱线, 以确保四极相互作用和 Knight 位移的影响在确定 NMR 线条位置时得到了充分考虑。

图 3 显示了 Knight 移位对 T 的依赖关系, 这是通

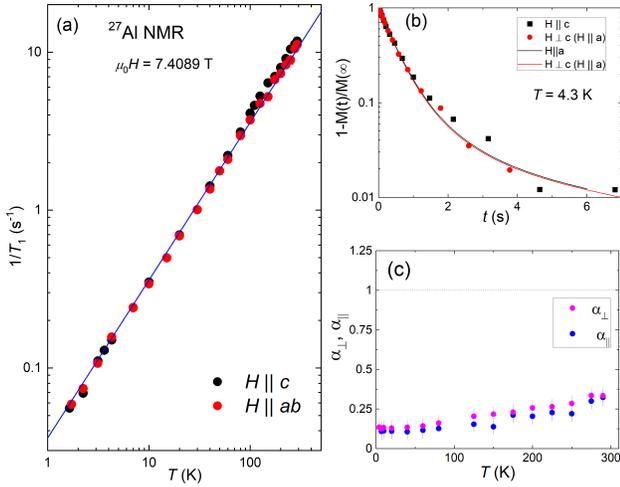


图 4. (a) T 对 $1/T_1$ 的依赖性，针对两个 H 方向、 $H \parallel c$ 轴和 $H \parallel ab$ 平面。实线表示 $1/T_1 = 0.036T$ 。(b) 在 $T = 4.3\text{ K}$ 下两个 H 方向的恢复曲线。实线是通过文中描述的松弛函数拟合得到的。(c) T 对 α_{\parallel} 和 α_{\perp} 的依赖关系。

通过对 Al(1) 的观测光谱拟合得到的 $H \parallel c$ (K_c) 和 $H \parallel ab$ 平面 (K_{ab})。在我们的实验误差范围内，我们没有看到 Al(1) 和 Al(2) 之间的 K 的差异。 K_c 和 K_{ab} 都随着 T 从 300 K 减少到 ~ 50 K 而略微减少，并在较低的 T 处趋于平稳（注意 $-K_c$ 和 $-K_{ab}$ 绘制在图 3 中）。如图 3 所示，Knight 移位对 T 的依赖性在高于 $\sim 50\text{ K}$ 时很好地与 χ 成比例，其中 χ_{ab} 暂定为 χ 是各向同性的。然而，Knight 移位与 χ 之间的明显差异可以在低于 ~ 50 K 时看到。我们还在较低的磁场 ~ 1.85 T 下测量了 K ，并确认了在低 T 条件下 K 几乎与 T 无关的行为。因此，在图 3 中观察到的低 T 时 χ 的上升被认为是非性质固有的，可能源于少量的顺磁性杂质、无序或缺陷。

骑士移位受到依赖于 T 的自旋部分 K_{spin} 和独立于 T 的轨道部分 K_0 的贡献。 K_{spin} 与自旋磁化率 χ_{spin} 通过超精细耦合常数 A 成正比，给出 $K = K_0 + \frac{A}{N_A \mu_B} \chi_{\text{spin}}$ ，其中 N_A 是阿伏伽德罗数。图 3(b) 的插图分别将 K_{ab} 和 K_c 绘制于相应的 χ_{ab} 和 χ_c 之上，其中 T 作为隐含参数。我们使用了上述 100 K 以上的 K_{ab} 和 K_c 数据，以避免由在低 T 观察到的外在贡献引起的对磁化率数据的贡献。如图所示， K_{ab} 和 K_c 几乎呈线性变化与相应的 χ ，超精细耦合常数估计为 $A_c = (-1.2 \pm 0.2) \text{ T}/\mu_B$ 和 $A_{ab} = (-1.2 \pm 0.2) \text{ T}/\mu_B$ 对于 $H \parallel c$ 和 $H \parallel ab$ ，分别从线性直线的斜率得出。 K_0 的值分别

为 $H \parallel c$ 和 $H \parallel ab$ 估计为 0.003 和 -0.004% 。值得注意的是，我们的超精细耦合常数值与之前报道的 $0.0657 \text{ T}/\mu_B$ 在大小和符号上都存在显著差异 [12]。尽管在之前的论文中没有指定 ^{27}Al NMR 测量的 H 方向 [12]，他们所观察到的 NMR 谱图仅有一组 $I = 5/2$ （即五条线）且线条间间距不均匀的情况与我们对至少三个不同 H 方向的观测结果有显著差异，如图所示。2(a) 至 (c) 在本研究中。此外，他们的论文 [12] 中未报告任何 ν_Q 的铝核磁共振值。目前，尽管我们对截然不同的核磁共振谱没有明确的了解，但我们认为我们的核磁共振谱是可靠的，因为我们观察到了来自化合物中存在的两个不同铝位点的两种铝核磁共振信号。

为了研究动态磁性特性，我们测量了 $1/T_1$ 对应于 T 的变化（图 4(a)）。此处的 $1/T_1$ 在光谱峰值位置进行了测量。由于峰值位置的信号强度主要由 Al(1) 决定，这里讨论的 $1/T_1$ 可以归因于 Al(1)。 $1/T_1$ 几乎是各向同性的，并且在整个 T 范围内大致与 T 成正比，尽管在高于 ~ 70 K 的高 T 处似乎观察到轻微的偏差，从微观角度来看，这表明了金属性状态。图 4(b) 显示了两个 H 方向的核磁化恢复曲线以及拟合结果。如上所述，恢复曲线很好地拟合了唯一的 T_1 函数。这可能表明 Al(2) 的 T_1 与 Al(1) 非常相似。

为了详细检查自旋涨落的特性，我们进行了一种修改后的科尔灵关系分析。在一个费米液体图像中， $1/T_1 T$ 与费米能级处的状态密度的平方 $\mathcal{D}(E_F)$ 成正比，而 $K_{\text{spin}} (\propto \chi_{\text{spin}}$ 与 $\mathcal{D}(E_F)$ 成正比。特别是， $T_1 T K_{\text{spin}}^2 = \frac{\hbar}{4\pi k_B} \left(\frac{\gamma_e}{\gamma_N} \right)^2 = S$ ，这就是科尔灵关系。与 S 的偏差可以揭示材料 [21, 22] 中电子关联的信息，这些信息通过参数 $\alpha = S/(T_1 T K_{\text{spin}}^2)$ 表达。例如，增强 $\chi(\mathbf{q} \neq 0)$ 增加了 $1/T_1 T$ ，但对 K_{spin} 几乎没有影响，后者仅探测均匀的 χ 且 $\mathbf{q} = 0$ 。因此 AFM 相关性的 $\alpha > 1$ 和 FM 相关性的 $\alpha < 1$ 。

由于 $1/T_1 T$ 探测与磁场垂直的磁涨落，因此在考察 ab 平面 [23] 中磁涨落特性时，考虑 Korringa 比值 $1/T_{1,\perp} T K_{\text{spin},ab}^2$ 是很自然的，其中 $1/T_{1,\perp} T = 1/(T_1 T)_{H \parallel c}$ 。类似地，我们考虑磁波动沿 c 轴的 Korringa 比值 $1/T_{1,\parallel} T K_{\text{spin},c}^2$ 。这里 $1/(T_{1,\parallel} T)$ 是从 $2/(T_1 T)_{H \parallel ab} - 1/(T_1 T)_{H \parallel c}$ 估算得到的。通过利用 $1/(T_{1,\perp} T K_{\text{spin},ab}^2)$ 和 $1/(T_{1,\parallel} T K_{\text{spin},c}^2)$ ，计算出 α_{\perp} 和 α_{\parallel} ，其结果如图 4(c) 所示。 α_{\parallel} (α_{\perp}) 从 290 K 时的 ~ 0.32 (0.33) 下降到大约 50 K 时的 ~ 0.11 (0.13)，然后

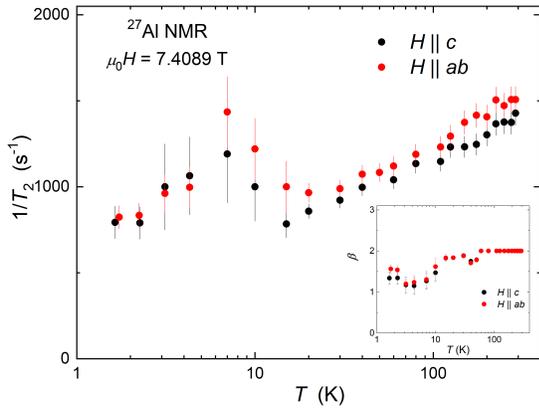


图 5. T_1/T_2 对两个磁场方向的依赖性, $H \parallel c$ 轴和 $H \parallel ab$ 平面。嵌入: T 对 β 在两个 H 方向、 $H \parallel c$ 轴和 $H \parallel ab$ 平面的依赖性。

在该温度以下变得几乎与温度无关, 这表明低温下铁磁自旋相关性占主导。此外, α_{\perp} 接近 α_{\parallel} , 暗示铁磁相关性几乎是各向同性的。 α_{\parallel} 和 α_{\perp} 在 $\text{Sc}_3\text{Mn}_3\text{Al}_7\text{Si}_5$ 中的最低值略大于近乎铁磁化合物 SrCo_2P_2 、 BaCo_2As_2 和 SrCo_2As_2 , 其中也报道了主导的铁磁自旋涨落 [24–26]。上述分析基于一个简单模型, 即核弛豫是由 $\mathcal{D}(E_F)$ 在 Al(1) 位点通过原位超精细相互作用引起的, 在此过程中, Al-3p 带与 Mn-3d 带混合。另一方面, 如果弛豫仅由局域化的 Mn 电子自旋通过各向同性的转移超精细相互作用引起, 则 α 值将因给定 Al(1) 的最近邻 Mn 离子数量而被修正一个因子 2。无论模型如何, α 值似乎与 FM 自旋涨落一致。

最后, 我们讨论基于在 ^{27}Al -NMR 谱峰位置测量的 $1/T_2$ 对 T 的依赖性的慢自旋动力学。这里再次考虑我们在 Al(1) 位点测量 T_2 。如图 5 所示, $1/T_2$ 在 $H \parallel c$ 和 $H \parallel ab$ 下几乎相同, 在我们的实验不确定度范围内表现出相似的 T 依赖性, 其中, 随着 T 的减小, $1/T_2$ 逐渐降低至约 $T \simeq 15 - 20\text{K}$, 并开始增加, 然后在大约 7 K 处表现出峰值。

一般来说, $1/T_2$ 与 $1/T_1$ 相关, 并可以写为 [17] $\frac{1}{T_2} = \left(\frac{1}{T_2}\right)^* + \frac{1}{2}F_{\perp}(\omega_N) + F_z(0)$, 的形式, 其中包含 $F_{\perp}(\omega_N) = \frac{1}{T_1}$ 。这里, $F_{\alpha}(\omega)$ 是纵向 ($\alpha=z$) 和横向 ($\alpha=\perp$) 分量的涨落局部场 (h_{α}) 的谱密度, 并由 $F_{\alpha}(\omega_N) = \frac{1}{2}\gamma_N^2 \int_{-\infty}^{+\infty} \langle h_{\alpha}(t)h_{\alpha}(0) \rangle \exp(i\omega_N t) dt$ 描述。 $(1/T_2)^*$ 是由于核偶极-偶极相互作用 [16, 17] 并且与 T 无关。由于观测到的 $1/T_2$ 如上所述显示出 T 相关性, 因此 $(1/T_2)^*$ 在这里不相关。

因此, $1/T_2$ 的 T 相关部分来自于源自 $F_z(0)$ 和 $F_{\perp}(\omega_N)$ 的另外两项。 $F_z(0)$ 由磁波动的纵向分量在接近零频率且数量级为 kHz 的驱动, 而 $F_{\perp}(\omega_N)$ ($=1/T_1$) 则来源于波动在数量级为 MHz 的 NMR 频率下的横向分量。如上所示, 在 $1/T_1$ 的 T 依赖关系中, 7K 附近没有异常, 而在 $1/T_2$ 中观察到的增强可以归因于 $F_z(0)$ 。这表明在外部磁场方向上, Al(1) 位点的超精细场沿纵向有非常缓慢的波动, 频率为千赫兹或更低。由于我们在 50K 以下观察到了铁磁自旋涨落, 因此这种非常缓慢的纵向超精细场波动可以归因于铁磁涨落。由于 $F_{\perp}(\omega_N)$, 即 $1/T_1$, 在 ω_N 的核磁共振频率下拾取超精细波动, 而 $F_z(0)$ 关于 $\omega=0$ 的超精细波动, 这些结果表明 FM 自旋波动的谱密度在低 T 下延伸到 $\omega \sim 0$ 。因此, 我们建议在低 T 处, FM 自旋涨落会减慢, 这可能与之前的报告一致, 该报告指出由于费米能附近 [12] 的平坦带引起的 FM 不稳定性。

最近, 磁波动被提出作为在 kagome 金属 YMn_6Sn_6 [27] 中高温下大型拓扑霍尔效应的机制。在 kagome 金属 LaRu_3Si_2 超导体中, 电子相关性和铁磁波动也被发现对于理解该材料中的非费米液体行为和高超导转变温度至关重要 [28]。本研究中发现的铁磁波动可能在 $\text{Sc}_3\text{Mn}_3\text{Al}_7\text{Si}_5$ 的有趣物理性质中扮演重要角色, 这值得进一步研究。总之, 我们对 $\text{Sc}_3\text{Mn}_3\text{Al}_7\text{Si}_5$ 进行了 ^{27}Al NMR 测量以研究其静态和动态磁性质。观察到了两个不同的 ^{27}Al NMR 信号, 具有两种不同的四极频率值 $\nu_Q = 1.55(2)$ 和 $1.07(2)$ MHz, 分别归属于 Al(1) 和 Al(2)。通过在三个不同磁场方向下的详细 NMR 光谱测量和 DFT 计算, 确定了每个 Al 站点的 EFG 主轴。基于使用 T_1 和 K 数据的 Korringa 比率分析, 在 Kagome 金属 $\text{Sc}_3\text{Mn}_3\text{Al}_7\text{Si}_5$ 中发现, 低温度下的铁磁自旋涨落占主导地位。此外, 建议在低温下铁磁涨落非常缓慢, 频率约为千赫兹或更低。我们的研究结果强烈呼吁对近铁磁三角晶格金属 $\text{Sc}_3\text{Mn}_3\text{Al}_7\text{Si}_5$ 进行进一步的详细调查, 以表征其特殊的磁性性质。

I. 致谢

该研究得到了美国能源部基础能源科学司材料科学与工程分部的支持。Ames 国家实验室由爱荷华州立大学为美国能源部运营, 合同编号为 DE-AC02-

07CH11358. C.D. 和 Y.N. 获得了 NSF 职业奖 DMR-1944975 的支持。M.H.P 感谢美国能源部基础能源

科学司材料科学与工程分部通过资助号 DE-FG02-07ER46438 提供的支持。

-
- [1] J.-X. Yin, B. Lian, and M. Zahid Hasan, Topological kagome magnets and superconductors, *Nature* **612**, 647 (2022).
- [2] X. Xu, J.-X. Yin, Z. Qu, and S. Jia, Quantum interactions in topological R166 kagome magnet, *Rep. Prog. Phys.* **86** 114502 (2023).
- [3] J.-X. Yin *et al.*, Quantum-limit Chern topological magnetism in TbMn_6Sn_6 , *Nature* **583**, 533 (2020).
- [4] S. X. M. Riberolles, T. J. Slade, D. L. Abernathy, G. E. Granroth, B. Li, Y. Lee, P. C. Canfield, B. G. Ueland, L. Ke, and R. J. McQueeney, Low-temperature competing magnetic energy scales in the topological ferrimagnet TbMn_6Sn_6 , *Phys. Rev. X* **12**, 021043 (2022).
- [5] S. X. M. Riberolles, T. J. Slade, R. L. Dally, P. M. Sarte, B. Li, T. Han, H. Lane, C. Stock, H. Bhandari, N. J. Ghimire, D. L. Abernathy, P. C. Canfield, J. W. Lynn, B. G. Ueland, and R. J. McQueeney, Orbital character of the spin-reorientation transition in TbMn_6Sn_6 , *Nat. Commun.* **14**, 2658 (2023).
- [6] S. X. M. Riberolles, T. J. Slade, T. Han, B. Li, D. L. Abernathy, P. C. Canfield, B. G. Ueland, P. P. Orth, L. Ke, and R. J. McQueeney, Chiral and flat-band magnetic quasiparticles in ferromagnetic and metallic kagome layers, *Nat. Commun.* **15**, 192 (2024).
- [7] S. Cao, C. Xu, H. Fukui, T. Manjo, Y. Dong, M. Shi, Y. Liu, C. Cao, and Y. Song, Competing charge-density wave instabilities in the kagome metal SeV_6Sn_6 , *Nat. Commun.* **14**, 7671 (2023).
- [8] G. Pokharel, S. M. L. Teicher, B. R. Ortiz, P. M. Sarte, G. Wu, S. Peng, J. He, R. Seshadri, and S. D. Wilson, Electronic properties of the topological kagome metals YV_6Sn_6 and GdV_6Sn_6 , *Phys. Rev. B* **104**, 235139 (2021).
- [9] Brenden R. Ortiz, Lídia C. Gomes, Jennifer R. Morey, Michal Winiarski, Mitchell Bordelon, John S. Mangum, Iain W.H. Oswald, Jose A. Rodriguez-Rivera, James R. Neilson, Stephen D. Wilson, Elif Ertekin, Tyrel M. McQueen, and Eric S. Toberer, New kagome prototype materials: Discovery of KV_3Sb_5 , RbV_3Sb_5 , and CsV_3Sb_5 , *Phys. Rev. Mater.* **3**, 094407 (2019).
- [10] R. Ortiz, S. M. L. Teicher, Y. Hu, J. L. Zuo, P. M. Sarte, E. C. Schueller, A. M. M. Abeykoon, M. J. Krogstad, S. Rosenkranz, R. Osborn, R. Seshadri, L. Balents, J. He, and S. D. Wilson, CsV_3Sb_5 : A Z2 Topological Kagome Metal with a Superconducting Ground State, *Phys. Rev. Lett.* **125**, 247002 (2020).
- [11] S. D. Wilson, and B. R. Ortiz, AV_3Sb_5 kagome superconductors, *Nat. Rev. Mater.* **9**, 420 (2024).
- [12] S. Samanta, H. Park, C. Lee, S. Jeon, H. Cui, Y.-X. Yao, J. Hwang, K.-Y. Choi, and H.-S. Kim, Emergence of flat bands and ferromagnetic fluctuations via orbital-selective electron correlations in Mn-based kagome metal, *Nat. Commun.* **15** 5376 (2024).
- [13] H. He, W. Müller, and M. C. Aronson, New Kagome Metal $\text{Sc}_3\text{Mn}_3\text{Al}_7\text{Si}_5$ and Its Gallium-Doped Analogues: Synthesis, Crystal Structure, and Physical Properties, *Inorg. Chem.* **53**, 9115 (2014).
- [14] X. Y. Li, D. Reig-i-Plessis, P.-F. Liu, S. Wu, B.-T. Wang, A. M. Hallas, M. B. Stone, C. Broholm, and M. C. Aronson, Neutron scattering study of the kagome metal $\text{Sc}_3\text{Mn}_3\text{Al}_7\text{Si}_5$, *Phys. Rev. B* **104**, 134305 (2021).
- [15] A. Narath, Nuclear Spin-Lattice Relaxation in Hexagonal Transition Metals: Titanium, *Phys. Rev.* **162**, 320 (1967).
- [16] C. P. Slichter, *Principles of Magnetic Resonance*, 3rd ed. (Springer, New York, 1990).
- [17] A. Abragam, *The Principles of Nuclear Magnetism*. (Clarendon Press, Oxford, 1961).
- [18] P. Blaha, K. Schwarz, G. K. H. Madsen, D. Kvasnick, and J. Luitz, WIEN2K, An Augmented Plane Wave+Local Orbitals Program for Calculation Crystal Properties (Karlheinz Schwarz, Technical Universität Wien, 2001).
- [19] J. P. Perdew, K. Burke, and M. Ernzerhof, *Phys. Rev. Lett.* **77**, 3865 (1996).
- [20] The observed ^{27}Al NMR spectra are quite different from the previous report in [12].
- [21] T. Moriya, The Effect of Electron-Electron Interaction on the Nuclear Spin Relaxation in Metals, *J. Phys. Soc. Jpn.* **18**, 516 (1963).
- [22] A. Narath and H. T. Weaver, Effects of Electron-Electron Interactions on Nuclear Spin-Lattice Relaxation Rates and Knight Shifts in Alkali and Noble Metals, *Phys. Rev.* **175**, 378 (1968).
- [23] P. Wiecki, B. Roy, D. C. Johnston, S. L. Bud'ko, P. C. Canfield, and Y. Furukawa, Competing Magnetic Fluc-

- tuations in Iron Pnictide Superconductors: Role of Ferromagnetic Spin Correlations Revealed by NMR, *Phys. Rev. Lett.* **115**, 137001 (2015).
- [24] N. Furukawa, Q.-P. Ding, J. Schmidt, S. L. Bud'ko, P. C. Canfield, and Y. Furukawa, Inhomogeneous magnetic ordered state and evolution of magnetic fluctuations in $\text{Sr}(\text{Co}_{1-x}\text{Ni}_x)_2\text{P}_2$ revealed by ^{31}P NMR, *Phys. Rev. B* **110**, 014439 (2024).
- [25] P. Wiecki, V. Ogloblichev, A. Pandey, D. C. Johnston, and Y. Furukawa, Coexistence of antiferromagnetic and ferromagnetic spin correlations in SrCo_2As_2 revealed by ^{59}Co and ^{75}As NMR, *Phys. Rev. B* **91**, 220406(R) (2015).
- [26] K. Ahilan, T. Imai, A. S. Sefat, and F. L. Ning, NMR investigation of spin correlations in BaCo_2As_2 , *Phys. Rev. B* **90**, 014520 (2014).
- [27] N. J. Ghimire, R. L. Dally, L. Poudel, D. C. Jones, D. Michel, N. T. Magar, M. Bleuel, M. A. McGuire, J. S. Jiang, J. F. Mitchell, J. W. Lynn, and I. I. Mazin, Competing magnetic phases and fluctuation-driven scalar spin chirality in the kagome metal YMn_6Sn_6 , *Sci. Adv.* **6**, eabe2680 (2020).
- [28] Y. Wang, Electronic correlation effects on stabilizing a perfect Kagome lattice and ferromagnetic fluctuation in LaRu_3Si_2 , *JUSTC* **53**, 0702 (2023).