arXiv:2611.30395v1 [cond-mat.supr-con] 23 Nov 2026

中子自旋共振探测$CeCoIn_5$中的三重态对密度波

David W. Tam[1, 2, 3*†], Ilaria Maccari[4, 5†], St´ephane Raymond[6, *], Barry Winn[7], Paul Steffens[1], Arno Hiess[1,8], Jacques Ollivier[1], Dariusz Jakub Gawryluk[2], Ekaterina Pomjakushina[2], Aline Ramires[5, 9, *], Michel Kenzelmann[2, *]

[1]劳厄-朗之万研究所，法国格勒诺布尔烈士大道71号，邮编38042，Grenoble Cedex 9。[2]PSI中子与μ子科学中心，瑞士维利根PSI 5232。[3]瑞典皇家理工学院应用物理系，瑞典斯德哥尔摩SE-106 91。[4]苏黎世联邦理工学院理论物理研究所，瑞士苏黎世8093。[5]PSI科学计算、理论与数据中心，保罗·谢errer研究所，瑞士维利根PSI 5232。[6]格勒诺布尔阿尔卑斯大学，法国原子能和替代能源委员会，IRIG，MEM，MDN，法国格勒诺布尔38000。[7]橡树岭国家实验室中子散射部，美国田纳西州橡树岭37831。[8]欧洲散裂中子源，瑞典隆德221 00，邮政信箱176。[9]维也纳工业大学固体物理研究所，奥地利维也纳1040。

[*]通讯作者。电子邮件：tamd@ill.fr、raymond@ill.fr、imaccari@phys.ethz.ch、aline.ramires@tuwien.ac.at、michel.kenzelmann@psi.ch

[†]这些作者对本研究贡献相同。

自旋共振模是非常规超导体最具代表性的集体激发之一，但其微观起源仍未解决。尽管通常将其解释为纯粹的磁激发，这一图像却无法解释在重费米子超导体中观测到的此类模丰富的磁场演化。在此，我们结合非弹性中子散射

和对称性分析，研究重费米子超导体 $CeCoIn_5$ 在面内磁场下自旋共振模的演化。在高磁场下，随着磁场接近超导体的上临界场，我们发现了第三个共振模，其强度相对较高。我们证明，实验观测到的共振支可以解释为超导凝聚态的集体模，涉及向激发超导态的跃迁。这一框架统一解释了共振的场诱导劈裂、高磁场下新观测到的模以及各模相对的中子散射强度，并首次提供了直接证据，表明自旋共振模可以与超导体的单重态-三重态激发相关联。

自旋共振模（SRM）是非常规超导体中最显著的集体激发之一（*1*）。它们仅在铜氧化物超导体（*2,3*）、铁基超导体（*4,5*）和重费米子化合物（*6*）的超导转变温度以下才会出现，为探索磁性与超导性之间的相互作用提供了独特窗口。其能量与超导能隙呈现出引人注目的标度关系，因此有可能蕴含有关配对机制的普适信息（*7*）。然而，尽管数十年来实验和理论研究不断深入，对于不同类别非常规超导体中的自旋共振模，至今仍缺乏统一的微观理解。

四方晶系重费米子超导体 $CeCoIn_5$（图 1（a））为研究这一尚未解决的问题提供了一个尤其有吸引力的平台。它是一种洁净的准二维非常规超导体，具有 $T_c \simeq 2$。3 K 的超导转变温度和公认的 $d_{x^2-y^2}$-波序参量（*8,9,10,11,12*）。与许多非常规超导体不同，它的上临界场受泡利限制，因此可以在宽广的磁场范围内研究自旋共振，同时保持其处于超导态（*13,14*）。在零磁场下，$CeCoIn_5$ 没有静态磁序，为研究超导性与磁激发之间的耦合提供了一个简单的体系。

$CeCoIn_5$ 中的SRM在 T_c 以下出现，其能量约为0.6 meV，位于波矢 $\mathbf{Q} = (1/2,1/2,1/2)$ 附近（*15*）。在面内磁场作用下，SRM分裂为不同的分支，其中能量最低的分支随磁场增强近似线性下降，并在Q相出现时软化至零能量（*16*）。Q相被描述为一种

场诱导非公度自旋密度波（SDW）态，该态与超导性共存直至达到其上临界场（*13, 17,18*）。尽管这些观察结果促使人们将SRM解释为场诱导自旋密度波序的前驱（*19*），SRM的微观起源仍存在争议。特别是，中子散射测量对传统的自旋激子解释提出了质疑。观测到的是向上色散，而非预期的向下色散分支；此外，T_c 以下低能磁涨落受到部分抑制。这些现象促使人们转而将其解释为一种预先存在的类磁振子磁激发，其阻尼在超导态中减弱（*20,21*）。这些不同的情景凸显了$CeCoIn_5$中超导自由度、磁不稳定性与集体激发之间尚未解决的关系。一个引人遐想的可能性是，其集体性可以直接从超导序参量及其激发来理解，因为人们已经认识到，一般而言，高磁场态可能倾向于促进三重态配对（*22*）。

超越波矢简并的自旋共振分裂。我们首先考察低磁场下自旋共振随面内磁场变化的情况。在零磁场下，中子散射显示，在约 0.6 meV 处存在一个共振，分布于四个由对称性关联的卫星峰上，其波矢为$\mathbf{Q}_{1-4}$ =(1/2 ± δ,1/2 ± δ, 1/2)，其中 $\delta \approx 0.06$，如图 1(b) 所示（*19*）。施加面内磁场后，共振分裂为两个分支（图 1(c)）（*16,21*）。在 $H = 4$T 下进行的非弹性中子¯散射（图 2）清楚显示，位于约 $E = 0.35$ meV 处的下分支包含全部四个卫星峰。这一结果表明，自旋共振模（SRM）在磁场作用下分裂为两个分支，并不能归因于平行或垂直于外加磁场的不同有序波矢之间的简并解除。相反，磁场揭示了共振除磁有序波矢之外的另一种内部自由度。

Q相内部出现了一个独特的共振。随着磁场进一步增强，低能分支在 $H_Q = 9.8$ T 处软化至零能量，与 Q 相的出现同时发生。然而，在 H_Q 以上，我们发现了高能模的证据。最重要的是，我们观察到一个新分支的出现，其能量不随磁场变化，且接近零磁场下 SRM 的能量。我们将其称为“中心”分支，因为它的位置低于一个向上移动分支；我们在低场和高场测量中均识别出了这一分支（*16,21*）。

在图1(c)中，我们示意了通过飞行时间技术和三轴技术（见方法）进行的两项实验所测得的中心模位置。飞行时间实验表明，中心模的动量空间结构以**Q**附近为中心，并在 H_{c2} 处、 H = 12 T 以上消失，这清楚地表明它与超导态相关（图3）。此外，能量-动量切片揭示了沿（H， H）方向移动的独特向上色散特征，该方向平行于 [110]。由于先前研究在较低磁场下观察到了类似的向上色散特征（*21*），这些相同特征的出现进一步证明，这个新的中心分支是一个自旋共振模支。

自旋共振模作为超导态的集体激发。为解释这些观察结果，我们建立了一个理论框架，其中自旋共振模对应于超导凝聚态的集体激发，而非一种独立的磁不稳定性。我们将共振分支解释为从均匀自旋单态超导基态到次主导配对通道的跃迁，这与Bardasis–Schrieffer图景（*23*）的思路一致。在这一框架中，外加磁场会解除简并，并连续地重塑集体激发谱。随后，中子散射选择定则决定哪些激发能够被观测到。在我们的框架中，相关散射强度由磁化密度算符$\lambda|\ \hat{}\mathbf{S(Q)}\ |\lambda'$在超导基态$|\lambda$与激发态 $|\lambda'$之间的矩阵元决定（详情见方法和补充信息（*24*））。由于低磁场下的超导基态是自旋单态，非零矩阵元要求激发态具有自旋三重态分量。因此，中子散射能够直接探测激发态支的单态或三重态特征。

超导基态的性质。为确定导致观测到的自旋共振模（SRM）的激发配对通道，我们首先指出，$CeCoIn_5$ 具有四方对称性，在零磁场下形成均匀的 B_{1g} 超导态，其形状因子为 $\propto k_x^2 - k_y^2$，我们将其记作 $\Psi_{B_{1g}}$。基于将磁有序Q相与配对密度波（PDW）序联系起来的理论设想（*25,26, 27,28*），我们假设自旋密度波是由均匀的 B_{1g} 超导态与潜在的配对密度波共存所诱导的。

这一猜想使我们能够唯一确定对 Q 相有所贡献的配对密度波的对称性。为明确起见，我们重点研究调制波矢$\mathbf{Q}_{1,3}$，垂直于磁场的配对密度波（图 1(b)）。一旦磁场 $H_{\tilde{d}}$ 沿反对角线方向施加

¯ ¯方向 $d \equiv [110]$，唯一能够保持波矢不变、因而有助于对序参量的内部结构进行分类的对称操作，是法线沿 d 的镜面 $M_{\bar{d}}$（图 1(a)）。根据它们在 $M_{\bar{d}}$下的偶（e）或奇（o）特性，我们将相应的配对密度波序参量记为 $\Psi^{e\backslash o}{}_{\mathbf{Q}_{1,3}}$，，并将自旋密度波序参量记为 $S^z{}_{\mathbf{Q}_{1,3}}$。负责诱导自旋密度波的自由能项具有以下形式：$\propto iS^z_{+\mathbf{Q}_{1,}}{}_3\left(\Psi^*_{B_{1g}}\Psi^e_{-\mathbf{Q}_{1,3}} - \Psi_{B_{1g}}\Psi^{e*}_{+\mathbf{Q}_{1,3}}\right) + c.c.(27)$。由于 $\Psi_{B_{1g}}$ 和观测到的自旋密度波均为 $M_{\bar{d}}$-奇，按照对称性要求，参与此耦合的配对密度波分量必须为 $M_{\bar{d}}$-偶。因此，对 Q 相有所贡献的配对密度波的对称性可以唯一确定。第二个对称性允许项也得出相同结论：$\propto H_{\bar{d}}\, S^z_{+\mathbf{Q}_{1,}}{}_3\left(\Psi^*_{B_{1g}}\Psi^e_{-\mathbf{Q}_{1,3}} + \Psi_{B_{1g}}\Psi^{e*}_{+\mathbf{Q}_{1,3}}\right) + \text{c.c.}$，该项对磁场呈线性。由于 $H_{\bar{d}}$本身为 $M_{\bar{d}}$-偶，它不会改变耦合的镜面奇偶性，因此配对密度波分量仍必须为 $M_{\bar{d}}$-偶。

这种对称性分析也能解释：尽管自旋共振模在所有波矢$\mathbf{Q}_{1,...,4}$处都有强度，但当磁场沿 [110] 方向施加时，只有$\mathbf{Q}_{1,3}$ 处的模式会在 H_Q 凝聚（*29*）。外加磁场打破了对角方向与反对角方向之间的等价性，因而也打破了波矢平行于$\mathbf{Q}_{2,4}$，和垂直于$\mathbf{Q}_{1.3}$的调制态之间的等价性。两者的区别以及对波矢的选择性，可追溯至其底层均匀超导态的对称性。在零磁场下，两个对角镜面 M_d 和 $M_{\bar{d}}$分别保护超导序参量¯沿相应镜面的节点。沿 [110] 方向的磁场会破坏 M_d 镜面对称性，因此解除对反对角方向节点的对称性保护，而对角方向的节点仍受 $M_{\bar{d}}$保护（图4(a)）。由此产生的低能谱沿$\mathbf{Q}_{2,4}$，方向出现能隙，但沿$\mathbf{Q}_{1,3}$，方向仍保留低能准粒子，因而有利于波矢沿$\mathbf{Q}_{1,3}$方向的调制序。尽管两组波矢之间由此产生的能量差太小，无法在非弹性谱中分辨，但它仍可在相变时选择有序波矢。

低磁场下的激发态配对密度波。虽然配对密度波通常同时包含自旋单态和自旋三重态成分，但由于中子散射选择定则要求激发态具有自旋三重态才能产生非零强度，我们现在将重点放在后者上。在沿¯ [110] 方向施加磁场时，超导序参量中的自旋三重态成分可以在三个方向上均具有分量 $\mathbf{\Psi}^e_{\mathbf{Q}_{1,\ 3}}(\mathbf{k}) = [\Psi^e_d(\mathbf{k}),\ \Psi^e_{\bar{d}}(\mathbf{k}),\ \Psi^e_z(\mathbf{k})]^T_{\mathbf{Q}_{1,\ 3}}$（详见补充信息（*24*））。

自旋三重态超导序参量的多分量性质允许存在不同的序参量构型，其中一些可能是非幺正的（*30*），并使朗道自由能中的二次项具有一般形式（省略对**k** 的依赖），即 $f = \sum_s f_{\mathbf{Q}_s}$ 其中$f_{\mathbf{Q}_s} = \mathbf{\Psi}^{e\dagger}_{\mathbf{Q}_s} \mathrm{M}_H^{\mathbf{Q}_s} \mathbf{\Psi}^{e}_{\mathbf{Q}_s}$，其中，对于$\mathbf{Q}_{1,3}$，

$$\mathcal{M}_H^{\mathbf{Q}_{1,3}} = \begin{pmatrix} \alpha_d & \alpha_{d\bar{d}} & i\lambda H_{\bar{d}} \\ \alpha_{d\bar{d}} & \alpha_{\bar{d}} + \gamma H_{\bar{d}}^2 & 0 \\ -i\lambda H_{\bar{d}} & 0 & \alpha_z \end{pmatrix}. \tag{1}$$

我们将此矩阵用作自旋共振模的有效唯象描述，其特征值对应于相应模式的激发能量，旨在捕捉它们随磁场的演化及其混合。这里，$\alpha_{i=\{d,\bar{d},z\}} > 0$ 表示每个PDW自旋三重态分量单独存在时相对于基态的能量差，$\alpha_{d\bar{d}}$ 则表示零磁场下 Ψ_d 与 $\Psi_{\bar{d}}$ 之间一种由对称性允许的杂化项。项 $\gamma H_{\bar{d}}^2$（其中 $\gamma > 0$）体现了平行于磁场的d矢量分量所受的泡利限制效应，而关于磁场呈线性的项 $i\lambda H_{\bar{d}}$ 则描述了磁场与非幺正序参量的规范不变超导双线性项之间的耦合（详情参见补充信息（*24*））。

对该矩阵进行对角化，可得到三个正交的集体模，其内部结构随磁场而变化。其中两个对应于观测到的自旋共振模：能量随磁场增强而降低的下分支，以及能量随磁场增强而升高的上分支；我们分别将它们记为 $\Phi^-_{\mathbf{Q}_i}$ 和 $\Phi^+_{\mathbf{Q}_i}$。它们的特征向量决定了三个 d 矢量分量的权重，因此也决定了它们对中子散射强度的贡献；相应的特征值则决定了它们随磁场变化的能量。我们发现，场诱导劈裂源于三重态序参量的面内分量与面外分量之间的耦合，如图 4 所示（更多详情见补充信息（*24*））。有趣的是，我们的理论框架还预言了一个能量更高的第三个模，它可能对应于非弹性中子散射谱中 1.5 至 1.6 meV 之间一个此前从未被识别的额外特征，见图 3（g）。此外，我们模型预言的中子散射强度在上、下分支之间呈现内禀不对称性，这是由 d 矢量分量权重不同所致，见图 4（b）和（c）。对于一组具有代表性的参数，我们能够重现两个分支 $\Phi^-_{\mathbf{Q}_i}$ 和 $\Phi^+_{\mathbf{Q}_i}$的能量随磁

场线性变化的关系及其相对强度，其中 $\Phi^{-}_{\mathbf{Q}_i}$ 的强度约为 $\Phi^{+}_{\mathbf{Q}_i}$的两倍，与先前的实验结果（*16,21*）一致，见图 4（d）。

新中心共振模的出现。关于我们在高磁场实验中观测到的新“中心”模（图 3），具有自旋三重态关联的配对密度波凝聚自然会开启一个新的中子散射通道，其中凝聚的配对密度波是初态，而激发态具有自旋单态特征（图 1 (d)）。在外加¯磁场沿 [110] 方向时，唯一的另一自旋单态通道具有 A_g 对称性。因此，我们将中心分支归因于 A_g 表示下的均匀自旋单态激发态。为简便起见，我们考虑一个无特征的 s 波形状因子，它能为从凝聚的三重态配对密度波出发的跃迁提供非零中子散射矩阵元。将中心分支归属于具有自旋单态特征的超导激发态，也可以解释其能量几乎不随磁场变化，因为基态和激发态的均匀序都受到磁场的类似抑制。计算从配对密度波的自旋三重态分量到均匀 s 波自旋单态的激发所对应的中子散射强度后，我们发现强度随磁场几乎保持不变，这与 $H = 8 – 11.1$ T 下的三轴中子散射数据一致（图 3）。在我们的实验中，中心分支在 H_Q 以下出现，这可能与此前在 Q 相出现之前观测到的强磁涨落有关（*31*）；这很可能是由于转变在有限温度 $T = 0.04$ K 下发生热展宽所致。

讨论与展望。 关于 $CeCoIn_5$ 中 Q相的理论描述探索了多种机制，涉及超导性与磁性之间的相互作用。这些机制包括：有限动量配对与均匀的 $d_{x^2-y^2}$-波超导性耦合，从而诱导自旋密度波序（*26,27,28*）；以及泡利极限超导性、准粒子嵌套或涡旋晶格效应促进磁不稳定性（*32,33*）。然而，自旋共振模的微观起源仍存在争议。

我们的结果提出了一种新的解释，即自旋共振模是超导凝聚态的集体激发。在这一框架下，共振支对应于超导基态与次主导配对通道之间的跃迁，将巴丁–施里弗图像拓展到了中子散射探测的自旋敏感响应。场诱导劈裂反映了超导激发不同内部组分之间的耦合，而不是不同有序波矢之间简并性的解除。

中子散射选择定则还对这些激发的自旋特征施加了独立约束，要求低磁场下的激发态具有自旋三重态贡献，而高磁场下的基态具有自旋三重态贡献。

我们新提出的、基于超导态内集体激发的自旋共振模表征方法，或可为辨识其他非常规超导体中这些共振模的本质提供新途径。更广泛地说，我们的框架表明，自旋共振模可作为直接的光谱学探针，探测非常规超导体激发态中隐含的自旋三重态超导关联；迄今为止，这一点尚未在任何超导材料中得到确凿证实。然而，要确立这些拟议的集体激发与测得的共振能量之间的定量关系，还需要微观理论。

方法

实验详情。 $CeCoIn_5$ 单晶采用我们此前所述的铟助熔剂法生长（*34*）。通过离心使晶体与助熔剂分离，随后用盐酸蚀刻。$CeCoIn_5$ 样品呈片状，沿晶体基面延展。使用X射线劳厄仪对样品逐一进行定向并排列。

非弹性中子散射实验在 $H = 0 - 4$ T 的磁场下于 IN5（法国劳厄-朗之万研究所）(*35*)、$H = 11.1 - 12$ T 的磁场下于 Hyspec（美国橡树岭散裂中子源），以及 $H = 8 - 12$ T 的磁场下于 Thales（法国劳厄-朗之万研究所）(*36*)进行。我们的样品是一组晶体阵列，质量分别为 0.7 g（IN5、Thales）或 1.4 g（Hyspec）；这些晶体经过共轴排列，在所有方向上的样品马赛克度均小于 4°（详情见补充信息 (*24*)）。在所有实验中，磁场均沿样品基面内的 [110] 方向垂直施加。这种几何构型确保了磁场方向在样品坐标系中保持不变，即使样品发生旋转以测量整个水平 $[110] \times [001]$ 散射平面内的激发。这种几何构型确保对于所有测量配置，磁场始终沿 [110]位于晶体基面内，即使样品发生旋转以采集整个在 IN5，数据采集使用 $\lambda = 4.8$ ˚A，费米速度为 9600 rpm。在 Hyspec，数据采集使用 $E_i = 5.1$ meV，费米速度为 240 Hz。探测器容器的方向经过调整，以接收

入射角介于 2θ -3 度和 -63 度之间的中子。在 Thales，所有数据均使用 $k_f = 1.5$ ˚A 采集。

非弹性中子散射矩阵元。受二聚体系统中 SMR 图像的启发（*37,38*），我们将散射态视为具有给定总轨道角动量和自旋角动量的电子对，并将其展开为

$$|\lambda\rangle = \sum_{L,M_L}\sum_{S,M_S} \lambda^{LS}_{M_L M_S}\ |L, M_L\rangle \otimes |S, M_S\rangle\,, \tag{2}$$

其中，系数 $\lambda^{LS}_{M_L M_S}$ 编码了各态的轨道和自旋结构。非弹性中子散射微分截面的跃迁矩阵元因此可写为（*39*）

$$\begin{aligned}\langle\lambda|\,\hat{\mathbf{S}}(\mathbf{Q})\,|\lambda'\rangle \;=\; &\sum_{\substack{L,M_L,S,M_S\\ L',M'_L,S',M'_S}} \left(\lambda^{LS}_{M_L M_S}\right)^{*} \lambda'^{L'S'}_{M'_L M'_S} \sum_{k,q} 4\pi\, i^k\, Y^{q*}_k(\hat{\mathbf{Q}})\, I_{3Y}(L, M_L; L', M'_L; k, q) \\ &\times j_k(Q)\ \langle S, M_S|\ \hat{\mathbf{S}}\ |S', M'_S\rangle\,,\end{aligned} \tag{3}$$

其中，$\hat{}\mathbf{S}$是自旋算符，$I_{3Y}(L, M_L;\ L', M'_L;\ k, q) \equiv \int d\Omega_r\, Y^{M_L *}_L(\hat{r}) Y^q_k(\hat{r}) Y^{M'_L}_{L'}(\hat{r})$ 强制满足角动量选择定则，而 $j_k(Q)$ 是径向重叠积分，其取决于波矢 $Q = |\mathbf{Q}|$的大小。由于我们没有微观模型来计算径向积分，因此将其隐含的取值用作中子散射强度的单位。

在低场区，$H < H_Q$，系统从均匀的自旋单态$d_{x^2-y^2}$ 超导基态中散射出来，该基态由

$$|\lambda\rangle_{H<H_Q} = |\Psi_{B_{1g}}\rangle = |k_x^2 - k_y^2\rangle \otimes |s\rangle\,, \tag{4}$$

轨道（L=2）和自旋（S=0）态描述：

$$|k_x^2 - k_y^2\rangle = \tfrac{1}{\sqrt{2}}\big[\,|L{=}2, m{=}{-}2\rangle + |L{=}2, m{=}2\rangle\,\big];\quad |s\rangle = |S{=}0, M_S{=}0\rangle = \tfrac{1}{\sqrt{2}}\big(\,|\uparrow\downarrow\rangle - |\downarrow\uparrow\rangle\,\big). \tag{5}$$

最终态 $|\lambda'$ 对应于次主导的空间调制自旋三重态配对密度波构型的叠加，其具有 $M_{\vec{d}}$-偶对称性：

$$|\Psi^e_d\rangle = |k_x - k_y\rangle \otimes |\hat{x} + \hat{y}\rangle\,;\quad |\Psi^e_{\vec{d}}\rangle = |k_x + k_y\rangle \otimes |\hat{x} - \hat{y}\rangle\,;\quad |\Psi^e_z\rangle = |k_x - k_y\rangle \otimes |\hat{z}\rangle\,; \tag{6}$$

轨道（L=1）和自旋（S=1）态

$$|k_x \pm k_y\rangle = \tfrac{1}{2}\big[(1 \mp i)\,|L{=}1, m{=}{-}1\rangle - (1 \pm i)\,|L{=}1, m{=}1\rangle\,\big], \tag{7}$$

$$|\hat{x} \pm \hat{y}\rangle = \tfrac{1}{2}\big[(1 \pm i)\,|S{=}1, M_S{=}{-}1\rangle - (1 \mp i)\,|S{=}1, M_S{=}1\rangle\,\big], \tag{8}$$

$$|\hat{z}\rangle = |S{=}1,\ \ M_S{=}0\rangle\,。 \tag{9}$$

在四个测得的调制矢量处计算所得振幅；这些矢量的定义与实验散射几何保持一致（详见图 2 (a) 和补充信息（*24*））。以倒易晶格单位表示

$$\mathbf{Q}_1^M = (q,\, q,\, 0.5), \qquad \mathbf{Q}_2^M = (1-q,\, q,\, 0.5),$$
$$\mathbf{Q}_3^M = (1-q,\, 1-q,\, 0.5), \qquad \mathbf{Q}_4^M = (q,\, 1-q,\, 0.5), \tag{10}$$

其中 $q = 0$。44。

在高场区，一旦Q相形成，$H > H_Q$，基态便成为均匀自旋单态 $d_{x^2-y^2}$ 态与携带自旋三重态关联的配对密度波的叠加。因此，参与截面计算的初态演变为$|\lambda_{H>H_Q} = \alpha\,|d_{x^2-y^2}$ $+ \beta\,|\lambda_{\mathrm{PDW}}$，其中 $|\lambda_{\mathrm{PDW}} = \beta_d|\Psi_d^e + \beta_{\vec{d}}|\Psi_{\vec{d}}^e + \beta_z|\Psi_z^e$，其系数$\beta_i$ 由我们有效方法中式1的特征向量确定。三重态分量的存在开辟了一个新的散射通道，将基态的配对密度波调制分量与均匀自旋单态激发态相连。在 C_{2h} 点群中，该点群是在外加磁场下由 D_{4h} 降对称而来，符合偶宇称的唯一均匀自旋单态构型按 A_g 表示变换，最简单的情形由s波序参量描述。在基态的配对密度波分量与 A_g构型之间计算式（4），我们发现矩阵元非零。更多详情见补充信息（*24*）。

数据可用性

ILL 数据可通过所引 DOI（*35,36*）获取，并将在发表前公开。ORNL 数据可通过 Oncat 系统获取，并将在发表前公开。

参考文献和注释

1. J. M. Tranquada、G. Xu、I. A. Zaliznyak，超导性、反铁磁性与中子散射。《磁学与磁性材料杂志》**350**, 148–160 (2014), doi:10.1016/ j.jmmm.2013.09.029, http://dx.doi.org/10.1016/j.jmmm.2013.09.029.

2. Y. Sidis 等，高温超导体中的磁共振激发。*physicastatussolidi (b)* **241**(6), 1204–1210 (2004), doi:10.1002/pssb.200304498, http://dx.doi.org/ 10.1002/pssb.200304498.

3. M. Fujita，等，《高温 T_c 铜氧化物超导体自旋激发中子散射研究进展》。《日本物理学会志》**81**(1), 011007 (2012), doi:10.1143/jpsj.81.011007, http://dx.doi.org/10.1143/JPSJ.81.011007.

4. M. D. Lumsden, A. D. Christianson，《铁基超导体中的磁性》。《凝聚态物理学杂志》**22**(20), 203203(2010), doi:10.1088/0953-8984/22/20/203203, http://dx.doi.org/10.1088/0953-8984/22/20/203203.

5. P. Dai，《铁基超导体中的反铁磁序和自旋动力学》。现代物理评论**87** (3), 855–896 (2015), doi:10.1103/revmodphys.87.855, http://dx.doi.org/10.1103/RevModPhys.87.855.

6. O. Stockert、F. Steglich，重费米子超导体中的自旋共振。《物理学*C*：超导及其应用》**615**, 1354375 (2023), doi:10.1016/j.physc.2023.1354375, http://dx.doi.org/10.1016/j.physc.2023.1354375。

7. G.Yu、Y. Li、E. M. Motoyama、M. Greven，非常规超导体中磁共振与超导能隙之间的普适关系。《自然·物理》**5** (12), 873–875 (2009), doi:10.1038/nphys1426, http://dx.doi.org/10.1038/nphys1426。

8. C. Petrovic，等，$CeCoIn_5$ 在 2.3 K 下的重费米子超导性。《物理学杂志：凝聚态物质》**13** (17), L337–L342 (2001), doi:10.1088/0953-8984/13/17/103, http: // dx.doi.org/10.1088/0953-8984/13/17/103。

9. R. Settai，等，$CeCoIn_5$正常态和超导混合态中的准二维费米面与德哈斯–范阿尔芬振荡。《物理学杂志：凝聚态物质》**13**(27)，L627–L634（2001），doi:10.1088/0953-8984/13/27/103，http://dx.doi.org/10.1088/0953-8984/13/27/103。

10. R. Movshovich，等，$CeIrIn_5$ 和$CeCoIn_5$中的非常规超导性。《物理学*B*：凝聚态物质》**312-313**，7–12（2002），doi:10.1016/s0921-4526(01)01062-6，http: // dx.doi.org/10.1016/S0921-4526(01)01062-6。

11. Y.Kasahara，等，$CeCoIn_5$超导态中的反常准粒子输运。*Phys. Rev. B***72**，214515（2005），doi:10.1103/PhysRevB.72.214515，https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevB.72.214515。

12. M. P. Allan，等，成像重费米子中的库珀配对，$CeCoIn_5$ **9**（8），468–473，doi:10.1038/nphys2671，https://www.nature.com/articles/nphys2671。

13. A. Bianchi，等，$CeCoIn_5$中的一级超导相变。《物理评论快报》**89**（13）（2002），doi:10.1103/physrevlett.89.137002，http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevLett.89.137002。

14. M. Kenzelmann，《泡利限超导体中的奇异磁态》**80** (3), 034501，doi:10.1088/1361-6633/80/3/034501，https://doi.org/10.1088/1361-6633/80/3/034501。

15. C. Stock, C. Broholm, J. Hudis, H. J. Kang, C. Petrovic，《 *d* 波超导体 $CeCoIn_5$ 中的自旋共振》。*Phys. Rev.Lett.* **100**, 087001 (2008)，doi:10.1103/PhysRevLett.100.087001，https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevLett.100.087001。

16. C. Stock，等，《$CeCoIn_5$ 中自旋共振的磁场劈裂》。*Physical Re-view Letters* **109** (16) (2012)，doi:10.1103/physrevlett.109.167207，http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevLett.109.167207。

17. M. Kenzelmann，等，$CeCoIn_5$中的耦合的超导序与磁序。《科学》**321** (5896), 1652–1654（2008），doi:10.1126/science.1161818，http://dx.doi.org/10.1126/science.1161818。

18. M. Kenzelmann, 等，$CeCoIn_5$中由磁性驱动的超导 Q 相的证据。《物理评论快报》**104**，127001（2010），doi:10.1103/PhysRevLett.104.127001, https: // link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevLett.104.127001。

19. S. Raymond, G. Lapertot，CeCoIn$_5$中的伊辛非公度自旋共振：Q相的动力学前兆。《物理评论快报》**115** (3)（2015），doi:10.1103/physrevlett.115. 037001, http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevLett.115.037001。

20. Y. Song，等，《重费米子超导体 $Ce_{1-x}Yb_xCoIn_5$ 中中子自旋共振向上色散的稳健性》。《自然·通讯》**7** (1) (2016)，doi:10.1038/ ncomms12774, http://dx.doi.org/10.1038/ncomms12774。

21. Y. Song，等，CeCoIn$_5$ 中自旋共振模的本质。《通讯·物理》**3**(1) (2020), doi:10.1038/s42005-020-0365-8，http://dx.doi.org/10.1038/ s42005-020-0365-8。

22. H. Shimahara，反铁磁涨落介导的配对相互作用中单态和三重态吸引通道的共存 **69** (7)，1966–1969，doi:10.1143/JPSJ.69.1966, http://journals.jps.jp/doi/10.1143/JPSJ.69.1966。

23. A. Bardasis，J. R. Schrieffer，《超导体中的激子和等离激元》。*Physical Review***121** (4)，1050–1062（1961），doi:10.1103/physrev.121.1050, http://dx.doi.org/10.1103/ PhysRev.121.1050。

24. 参见补充信息（链接将被插入）。

25. A. Aperis，G. Varelogiannis，P. B. Littlewood，B. D. Simons，自旋密度波、d 波单态和交错 π-三重态超导性的共存。《物理学杂志：凝聚态物质》**20**(43)，434235（2008），doi:10.1088/0953-8984/20/43/434235，http://dx.doi.org/10.1088/0953-8984/20/43/434235。

26. K. Miyake，《CeCoIn$_5$ 的 FFLO态中自旋密度波与超导序耦合理论》。《日本物理学会志》**77**(12), 123703 (2008), doi:10.1143/jpsj.77.123703, http://dx.doi.org/10.1143/JPSJ.77.123703。

27. D. F. Agterberg, M. Sigrist, H. Tsunetsugu，《CeCoIn$_5$超导 Q 相中的序参量与涡旋》。《物理评论快报》**102**, 207004 (2009), doi:10.1103/PhysRevLett.102. 207004, https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevLett.102.207004。

28.A. Aperis, G. Varelogiannis, P. B. Littlewood, 《$CeCoIn_5$超导态中共存凝聚态的磁场诱导图样》。《物理评论快报》**104**(21) (2010), doi:10.1103/physrevlett.104.216403, http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevLett.104.216403。

29.S. Gerber，等，切换磁畴揭示空间不均匀的超导性。《自然·物理》*10* (2)，126–129（2013），doi:10.1038/nphys2833，http: //dx.doi.org/10.1038/nphys2833。

30. A. Ramires，复杂量子材料中的非幺正超导性。《物理学杂志：凝聚态物质》**34** (30)，304001（2022），doi:10.1088/1361-648x/ac6d3a，http://dx.doi.org/10.1088/1361-648X/ac6d3a。

31.G.Koutroulakis，等，$CeCoIn_5$ **104** (8)中共存超导序与磁序的磁场演化，087001，doi:10.1103/PhysRevLett.104.087001，https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevLett.104.087001。

32. Y. Kato, C. D. Batista, I. Vekhter, 《泡利极限非常规超导体中的反铁磁序》。《物理评论快报》**107** (9) (2011), doi:10.1103/physrevlett.107.096401, http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevLett.107.096401.

33. V. P. Michal, V. P. Mineev, $d_{x^2-y^2}$波超导体 $CeCoIn_5$ 中的场诱导自旋激子凝聚。《物理评论*B*》**84** (5) (2011), doi:10.1103/physrevb.84.052508, http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevB.84.052508.

34. D. W. Tam，等，$SmCoIn_5$ 中间价基态的电荷涨落。《通讯·物理》**6** (1) (2023), doi:10.1038/s42005-023-01339-1, http://dx.doi. org/10.1038/s42005-023-01339-1.

35. David W. Tam；KENZELMANN Michel；OLLIVIER Jacques 和 RAYMOND Stephane。（2021）。CeCoIn5 中共振模的塞曼劈裂。Institut Laue-Langevin (ILL) doi:10.5291/ILL-DATA.4-02-598。

36. David W.Tam；BOEHM Martin；KENZELMANN Michel；RAYMOND Stephane 和 STEF- FENS Paul。（2023）。CeCoIn5 的 Q相中的自旋三重态涨落。Institut Laue-Langevin (ILL) doi:10.5291/ILL-DATA.4-02-616。

37. B. Lake, D. A. Tennant, R. A. Cowley, J. D. Axe, C. K. Chen, 《反铁磁交替链化合物 $CuWO_4$ 有序相中的磁激发》。《物理学杂志：凝聚态物质》 **8**(44), 8613 (1996), doi:10.1088/0953-8984/8/44/013, https://doi.org/10.1088/0953-8984/8/44/013。

38. B. Lake, R. A. Cowley, D. A. Tennant, 《交替链化合物 $CuWO_4$ 有序相中磁激发的二聚体理论》。《物理学杂志：凝聚态物质》 **9**, 10951–10975 (1997), https://api.semanticscholar.org/CorpusID:97786317。

39. S. W. Lovesey, 《凝聚态物质中的中子散射理论》, 第2卷（牛津大学出版社）（1986）。

40. S. Raymond、J. Panarin、G. Lapertot、J. Flouquet, 《$CeCoIn_5$的自旋共振随磁场和镧替代的演变》**80**, SB023, doi:10.1143/JPSJS.80SB. SB023, http://journals.jps.jp/doi/10.1143/JPSJS.80SB.SB023。

致谢

本研究部分工作使用了散裂中子源的资源。该设施是美国能源部科学办公室用户设施，由橡树岭国家实验室运营。HYSPEC 的束流时间根据提案编号 IPTS-28345.1 分配。

资金支持

本研究得到瑞士国家科学基金会（SNSF）项目 200021 184983 的资助（M.K.）。D.W.T. 感谢欧盟地平线2020研究与创新计划通过玛丽·斯克沃多夫斯卡-居里资助协议第 884104 号提供的资助

（PSI-FELLOW-III-3i）。I.M. 感谢瑞士国家科学基金会（SNSF）通过 SNSF博士后资助 TMPFP2 217204 号提供的经费支持。A.R. 感谢瑞士国家科学基金会（ SNSF ）通过 Ambizione资助 PZ00P2 186043 号提供的经费支持。

作者贡献

D.W.T. 和 M.K. 构思了实验工作并指导了项目。I.M. 和 A.R. 构思了理论描述，并进行了对称性分析和定量计算。D.J.G. 和 E.P. 制备了样品并对其物理性质进行了初步表征，D.W.T. 则将样品共同定向安装在铝板上，为中子实验做准备。S.R.、D.W.T. 和 J.O. 开展了 IN5 实验。D.W.T. 和 B.W. 开展了 HYSPEC实验。D.W.T.、S.R.、P.S. 和 A.H. 开展了 Thales实验。D.W.T.、I.M.、A.R. 和 M.K. 在所有作者的意见基础上撰写了稿件。

竞争利益

作者声明不存在竞争利益。

材料与通信

联系事宜请联系 David W. Tam、Ilaria Maccari、Aline Ramires 或 Michel Kenzelmann。

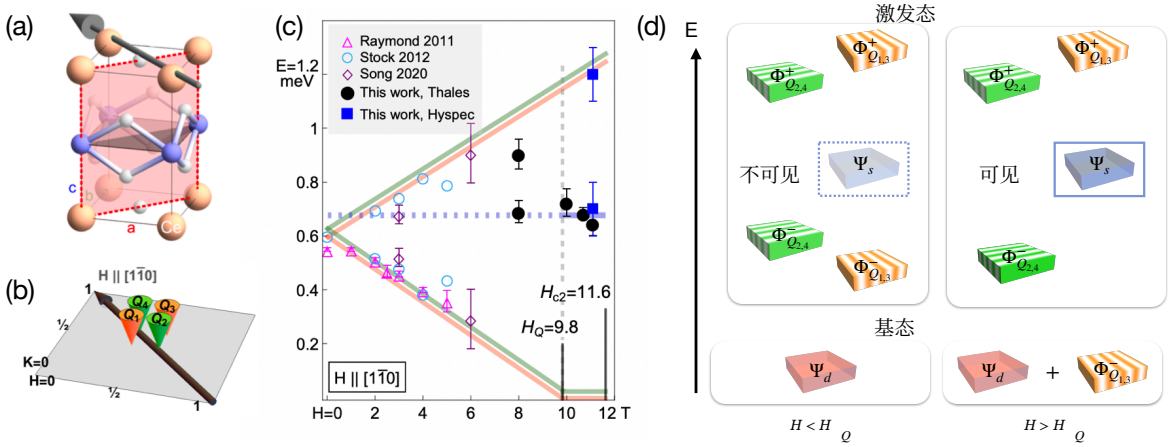

图1：高磁场下的新自旋共振模。（a）CeCoIn的晶体结构[5]突出显示在沿$\bar{1}$[110]方向施加磁场时仍保持为对称性的镜面（灰色箭头）。**(b)** 非弹性中子散射（INS）实验中识别出的波矢示意图。圆锥形表示源自每个 Q_i的向上色散。**(c)** 多项INS实验（*40, 16,21*）观测到的自旋共振模，并突出显示 $H > H_Q$对应的新分支。**(d)** 超导态中可能的激发示意图。对于 $H < H_Q$，超导基态仅由d波自旋单态分量（Ψ_d）构成，所有调制的自旋三重态激发态（$\Phi^{\pm}_{Q_i}$）都可被观测到，但均匀s波单态（Ψ_s）则不可观测。对于 $H > H_Q$，基态包含具有自旋三重态特征的调制分量（$\Phi^{-}_{Q_{1,3}}$），使得对应于均匀s波单态的中心模变得可见。

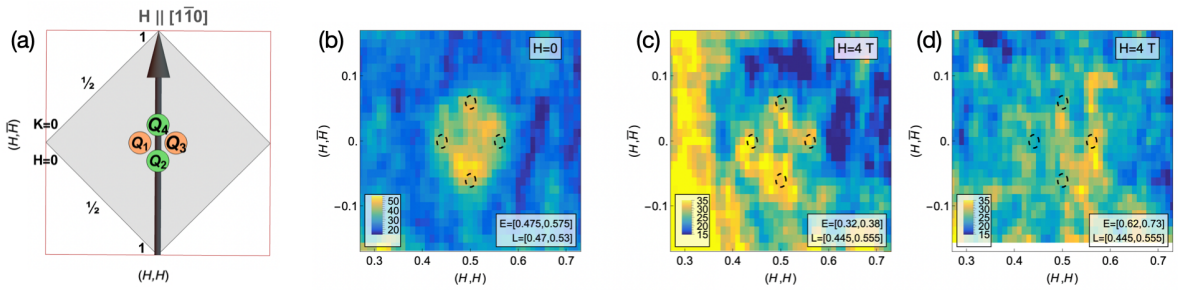

图2：在 $H = 0$ **和** $H = 4$**T下观测到的波矢**。(a) 星形的 $Q_1 = (0.44, 0.44, 1/2)$的四个臂在$(H, H, 1/2)\times(H, H, 1/2)$平面内的示意图。(b) 在零磁场下，IN5上于恒能量 $E = 0.525\pm0.05$ meV处进行的非弹性中子散射。虚线圆表示从这些位置向上色散的锥状结构底部（详情见补充信息（*24*））。(c) 在 $H = 4$ T下、 $E = 0.35 \pm 0.03$ meV处的恒能切片，对应于向下移动的分支，四个卫星峰均清晰可见；(d) $E = 0.675 \pm 0.055$ meV。

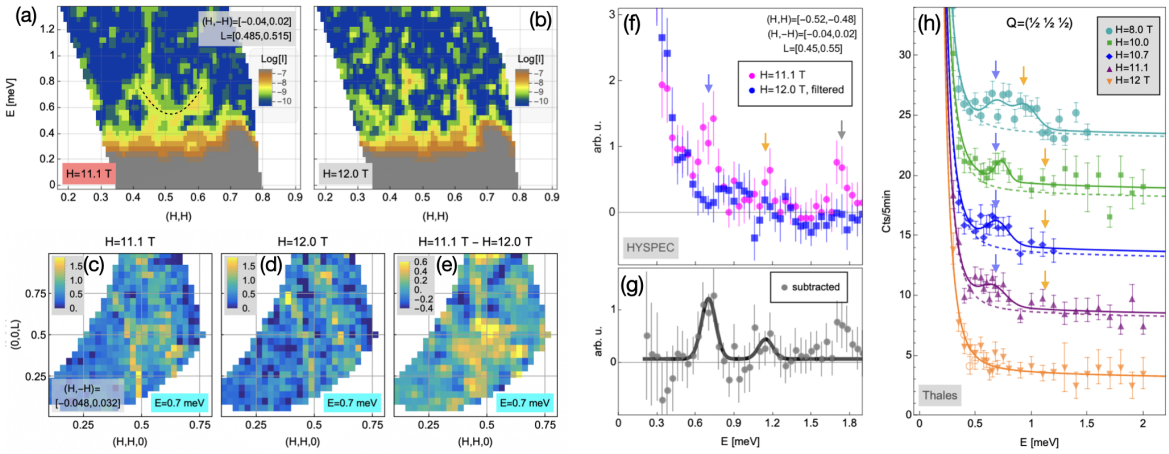

图3：高场区的非弹性中子散射。（a）在HYSPEC在 H = 11.1 T的Q相中，以及(b)在 H = 12.0 T的正常态中。由 Q = (1/2, 1/2, 1/2)发出的向上色散特征以虚线示意，且仅在(a)中可见。(c) 在 H = 11.1 T、(H, H, 0) 与 (0, 0, L)散射平面上的 E = 0.7 ± 0.075 meV恒能量切片；(d) H = 12.0 T；以及(e) 对 H = 11.1 − 12.0 T数据作差并平滑后的结果，以增强出现在 Q = (1/2, 1/2, 1/2)处的SRM特征，此处四个独立卫星峰彼此重叠。(f) HYSPEC数据中的SRM积分强度，对 H = 12.0 T数据进行了两点平滑以提高可读性；(g) 作差后的数据，显示在 E = 0.7 meV处存在一个强特征，并在 E = 1.1 meV附近有一个较弱特征，与SRM向上移动分支的预期位置一致。(h) Thales在五种磁场下的恒Q扫描：H = 8.0、10.0、10.7、11.1和12.0 T。对于 H = 8.0 T，我们的拟合假定中心分支和上分支均存在；而对于 H = 10.0 – 11.1 T，上分支明显较弱，因此仅拟合中心分支。中心分支在所有磁场下均保持相近的强度，直至在12.0 T完全消失。因此，假定12.0 T数据的拟合曲线代表与磁场无关的仪器背景，并以虚线显示在其他数据组下方。紫色和橙色箭头分别标示中心分支和上分支的位置。由于在Thales实验中上分支未能清晰观测到，我们标出了其预期位置，同时指出该峰可能被包含在假定背景中。

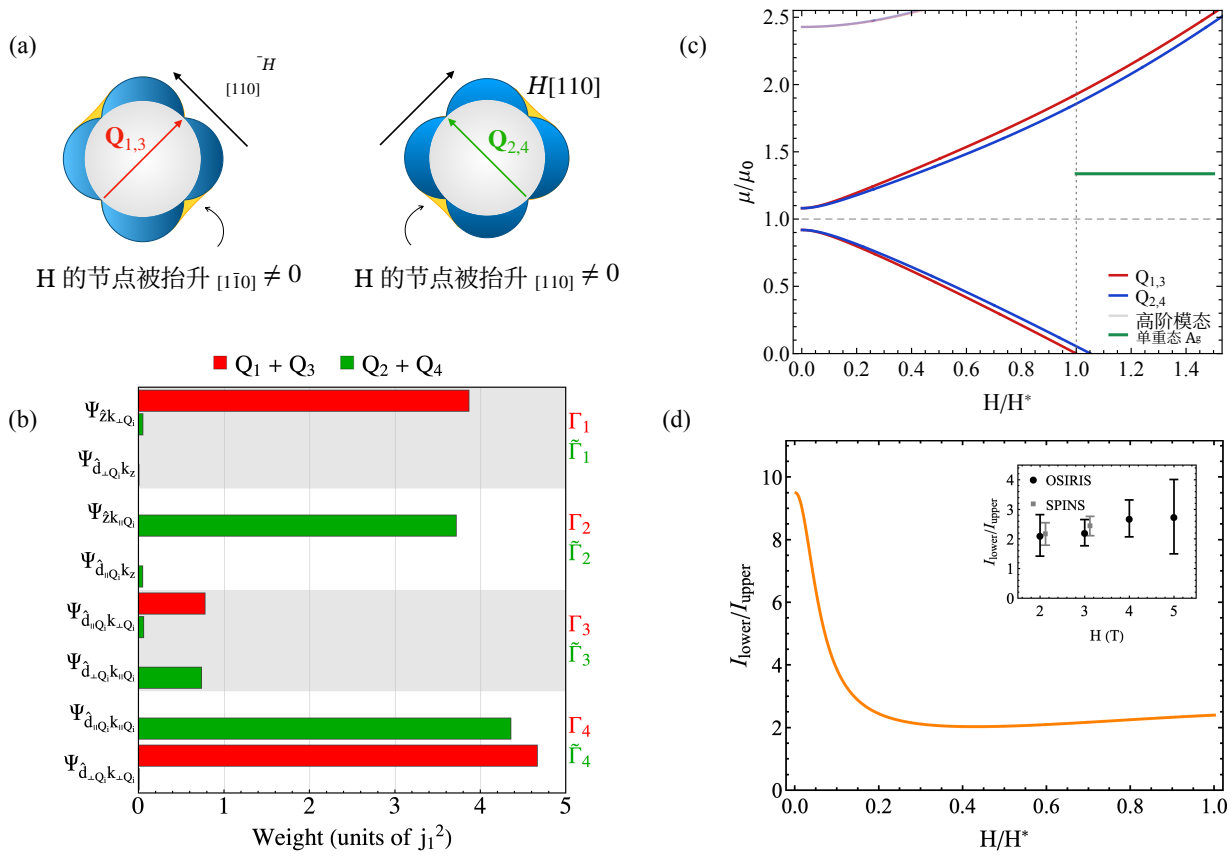

图 4：**超导态的集体激发：自旋共振模。(a)**示意图表-

均匀超导序参量$\Psi_{B_{1g}}$节点结构的示意图，其具有$d_{x^2-y^2}$形状因子（蓝色）。在沿 [110] ([110])方向施加外磁场时，法线沿对角线（反对角线方向）的镜面对称性被破坏，磁场方向上的节点通常会被抬升，从而阻碍具有特定 Q_i 矢量的调制序形成。(b) 按不可约表示归类的各PDW自旋三重态分量的中子散射权重：$Q_1 + Q_3$ （红色）和$Q_2 + Q_4$ （绿色）；对$Q_{1,3}$，为 Γ_i，对$Q_{2,4}$，为 Γ_i。形状因子以各自的Q_i 为参照表示（见补充信息（24））。(c) 根据公式（1），在$Q_{1,3}$ （红色）和$Q_{2,4}$ （蓝色）处，自旋共振模分支能量随磁场的演化；所用参数具有代表性：$\alpha_d = 1$；$\alpha_{\bar{d}} = 1.1$；$\alpha_z = 0.55$；$\alpha_{d\bar{d}} = 0.4$；$\lambda = 0.7$；$\gamma = 0.3$。能量以 μ_0为单位，即一对劈裂模的零场中心（更多详情见补充信息）；H 以 H^*为单位，此时下分支软化至零。 H 以 H^*为单位，此时下分支软化。(d) 在与(c)相同的参数下，下分支与上分支的强度比。插图：引文（16）中的实验数据点。（详情见补充信息（24）。）