

# 稀土元素三角格子体系中的 阻挫磁性与量子涨落\*

秦亚媛<sup>1</sup> 沈瑶<sup>1,†</sup> 陈钢<sup>1,2,††</sup> 赵俊<sup>1,3,4,5,†††</sup>

- (1 复旦大学物理学系 应用表面物理国家重点实验室 上海 200433)  
 (2 香港大学物理系 香港大学—UCAS理论与计算物理联合研究所 香港)  
 (3 复旦大学 微纳电子器件与量子计算机研究院 上海 200433)  
 (4 上海期智研究院 上海 200232)  
 (5 上海量子科学研究中心 上海 201315)

## Magnetic frustration and quantum fluctuation in rare-earth triangular-lattice magnets

QIN Ya-Yuan<sup>1</sup> SHEN Yao<sup>1,†</sup> CHEN Gang<sup>1,2,††</sup> ZHAO Jun<sup>1,3,4,5,†††</sup>

- (1 State Key Laboratory of Surface Physics, Department of Physics, Fudan University, Shanghai 200433, China)  
 (2 HKU-UCAS Joint Institute for Theoretical and Computational Physics at Hong Kong, Department of Physics, The University of Hong Kong, Hong Kong, China)  
 (3 Institute of Nanoelectronics and Quantum Computing, Fudan University, Shanghai 200433, China)  
 (4 Shanghai Qizhi Institute, Shanghai 200232, China)  
 (5 Shanghai Research Center for Quantum Sciences, Shanghai 201315, China)

2021-06-25 收到

† email: yaoshen13@fudan.edu.cn

†† email: gangchen@hku.hk

††† email: zhaoj@fudan.edu.cn

DOI: 10.7693/wl20210703

**摘要** 稀土元素三角格子阻挫体系在近几年受到了广泛的关注, 稀土元素中存在较强的自旋轨道耦合作用, 容易形成各向异性的磁相互作用, 结合复杂的晶体场结构, 可以产生很多新奇的物理性质, 实现包括量子自旋液体、内禀量子伊辛磁体和隐藏序在内的一系列新奇量子态。文章以最近的中子散射研究为例, 介绍稀土元素三角格子体系中的新奇磁关联与量子涨落现象。

**关键词** 量子磁体, 磁性阻挫, 自旋液体, 横场伊辛模型, 中子散射, 隐藏序

**Abstract** Rare-earth triangular-lattice magnets have received extensive attention in recent years. This class of materials in general exhibits strong spin-orbit coupling effects, anisotropic magnetic interactions, and complex crystal field structures, which may result in novel quantum states including quantum spin liquids, intrinsic quantum Ising magnets, and hidden order. Here, we present a brief review of the neutron scattering studies of the magnetic correlations and quantum fluctuations in rare-earth triangular-lattice magnets.

**Keywords** quantum magnet, magnetic frustration, spin liquid, transverse field Ising model, neutron scattering, hidden order

\* 国家科技支撑计划(批准号: 2016YFA0300203)、国家自然科学基金(批准号: 11874119)、上海市教育委员会科研创新计划(批准号: 2017-01-07-00-07-E00018)、上海市市级科技重大专项(批准号: 2019SHZDZX01)、香港研究资助局优配研究金(批准号: 17303819)资助项目

## 1 引言

在一些固体材料中，由于原子磁矩之间存在相互作用，在特定的转变温度以下磁矩趋向于形成某种有序排列。当磁相互作用存在阻挫竞争时，不同的磁基态拥有相同或者接近的能量，系统的磁矩无法有效地进入特定的有序态。具有反铁磁伊辛相互作用的三角格子是一个常见的几何阻挫体系，其中每个三角形格点上的磁矩无法同时满足两两反平行的要求，其基态呈现多重简并<sup>[1]</sup>。磁有序完全被压制的高简并态被称为自旋液体<sup>[2]</sup>。如果系统存在强量子涨落，其基态则是各个态的量子叠加态，此时虽然自旋之间高度关联纠缠，但直到绝对零度也不会进入磁有序，这种超越朗道相变理论的物质态被称为量子自旋液体<sup>[2-6]</sup>。这一概念由P. W. 安德森在1973年首先提出<sup>[7]</sup>，并在1987年被用来尝试解释高温超导机理<sup>[8]</sup>，且在量子计算和量子信息中也有潜在的应用前景<sup>[9]</sup>。除此之外，阻挫材料中还可以形成自旋冰<sup>[10]</sup>、隐藏序<sup>[11]</sup>和量子伊辛磁性<sup>[12, 13]</sup>等新奇的量子态和现象，近些年引起了广泛的关注。

镧族稀土元素是个理想的研究量子磁性的平台。在大部分稀土材料中，稀土元素的最外层5*d*电子参与成键，而更内层未占满的4*f*电子则贡献磁性。4*f*电子具有非常强的自旋轨道耦合，总角动量在周围离子的电场作用下进一步发生晶体场劈裂。不同的电子数、晶体场会导致截然不同的基态，从而呈现出丰富多彩的物理性质，实现一些奇异的量子模型。另外，由于4*f*轨道非常局域，使得磁相互作用较弱，与外场的能量尺度相当，因此稀土元素的磁性很容易受外场调控。

在本文中，我们以YbMgGaO<sub>4</sub>和TmMgGaO<sub>4</sub>为例，介绍三角格子稀土材料中新奇的量子磁性。

## 2 量子自旋液体

量子自旋液体在理论上有着广泛而深入的研究，但在实验上尚未有明确的结论。相当一部分实验研究集中在阻挫的三角格子<sup>[14, 15]</sup>、笼目格

子<sup>[16, 17]</sup>和烧绿石格子<sup>[10]</sup>以及有Kitaev相互作用的六角格子<sup>[18, 19]</sup>。对于三角格子，虽然实验表明最近邻海森伯模型可以形成非共线的120°磁结构，但理论发现次近邻相互作用和各向异性相互作用都可以加强阻挫<sup>[20-22]</sup>，从而有可能形成量子自旋液体态，而稀土元素则是一个理想的测试平台。

由于量子自旋液体态没有传统朗道相变对应的对称性破缺和序参量，因此量子自旋液体的实验验证有很大的难度。首先，量子自旋液体态是个无序态，直到绝对零度也不会发生相变，这点可以通过热力学测量、中子衍射、缪子自旋弛豫/旋转以及核磁共振等实验进行确认。更重要的是，不同于常规磁性材料中*S* = 1的磁振子激发，量子自旋液体的元激发可以是*S* = 1/2分数化自旋子激发，并具有长程量子纠缠<sup>[23]</sup>。因此，对于无能隙的量子自旋液体，比如具有自旋子费米面的*U*(1)量子自旋液体会拥有线性或亚线性的低温比热<sup>[24]</sup>，以及非零的剩余热导<sup>[25]</sup>。对于有能隙的量子自旋液体，则不会产生极低温的剩余热导<sup>[26]</sup>。非弹性中子散射是测量自旋子激发的重要手段，不同于磁振子激发所呈现的尖锐自旋波色散，自旋子激发在中子散射谱中表现为非常宽的连续谱，这一点与*S* = 1/2的一维自旋链中被广泛观测到的自旋子激发类似<sup>[27, 28]</sup>。需要指出的是，虽然

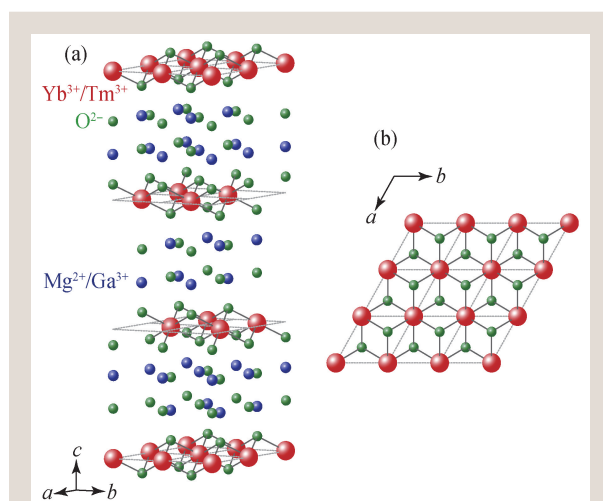


图1 YbMgGaO<sub>4</sub>和TmMgGaO<sub>4</sub>的晶体结构<sup>[37]</sup> (a)三维结构图，磁性稀土层被无磁性的Mg/GaO层分隔成准二维结构；(b)磁性稀土层形成了几乎完美的三角格子

一维自旋链也偶尔被称为量子自旋液体，但其自旋子激发是由于磁畴壁的运动产生，这区别于二维以上的量子自旋液体的形成机制。但是从自旋子所表现出来的特性，以及自旋子的实验测量方法上看，一维自旋链和二维以上的量子自旋液体有很多相似的地方。本文将首先介绍如何利用中子散射手段<sup>[29, 30]</sup>，结合其他测量，来研究稀土元素三角格子阻挫体系 YbMgGaO<sub>4</sub> 中的量子自旋液体行为。

## 2.1 YbMgGaO<sub>4</sub> 中的自旋关联

YbMgGaO<sub>4</sub> 很早便有报道<sup>[31]</sup>，后来因中国人民大学张清明课题组率先提出它可能实现量子自旋液体态才开始受到普遍关注<sup>[32]</sup>。YbMgGaO<sub>4</sub> 中 Yb<sup>3+</sup> 的总角动量  $J = 7/2$  ( $S = 1/2$ ,  $L = 3$ )，在氧离子形成的三角对称晶体场中劈裂成四组对称性保护的 Kramers 双重态，其中第一激发态远离基态 (40 meV)<sup>[32, 33]</sup>，因而低温下系统等效为有效自旋 1/2。YbO<sub>6</sub> 八面体在  $ab$  面内组成的三角格子在  $c$  方

向被 Ga/MgO 层隔开，形成了准二维的结构 (图 1)。由于非磁的 Mg/Ga 离子和磁性 Yb 离子的离子半径相差较大，因而不会发生互相取代，这可以有效减少样品内的磁性杂质。另外，Mg<sup>2+</sup> 和 Ga<sup>3+</sup> 占据的是同一个晶格位置，两者的混合占位会导致一定的晶格畸变和晶体场不均匀，但不同于很多自旋液体候选材料中结构无序发生在磁性离子层<sup>[17]</sup>，这里的无序出现在间隔层，因此对系统磁性的影响相对较小。实验发现 YbMgGaO<sub>4</sub> 的有效哈密顿量为各向异性的 XXZ 模型<sup>[34]</sup>，居里-外斯温度约为 -4 K<sup>[32, 34]</sup>，但比热、直流磁化率、缪子自旋弛豫测量均发现该体系一直到 60 mK (~0.005 meV) 也没有任何相变的迹象<sup>[32, 35-37]</sup>，说明 YbMgGaO<sub>4</sub> 的基态可能是量子自旋液体态。

我们首先用弹性中子衍射测量了 YbMgGaO<sub>4</sub> 的低温磁有序性质，发现直到 30 mK 的极低温下该体系仍然处在磁无序的状态。随后进一步用非弹性中子散射测量了 YbMgGaO<sub>4</sub> 的低温磁激发谱<sup>[37]</sup>。数据表明，该材料中的磁激发并不是尖锐的磁振子激发，而是非常宽的

连续谱 (图 2)。激发信号主要集中在布里渊区边界附近，但占据了大部分的布里渊区，这一点和预期的自旋子激发相吻合。我们详细测量了沿着高对称方向的色散，证实了这种连续谱普遍存在于整个磁激发的带宽之内，但同时又存在明显的色散，具有明显的激发边界。譬如，由于布里渊区中心的信号被压制，使得  $\Gamma$  点附近形成了 V 字形的上边界。

我们同时计算了自旋子费米面量子自旋液体的自旋子激发谱。类似于金属中的电子，量子自旋液体中的自旋子具有单粒子能带结构，并且在这里处于半填满的状态，形成了非常大的费米面 (图 3(a))。在自旋

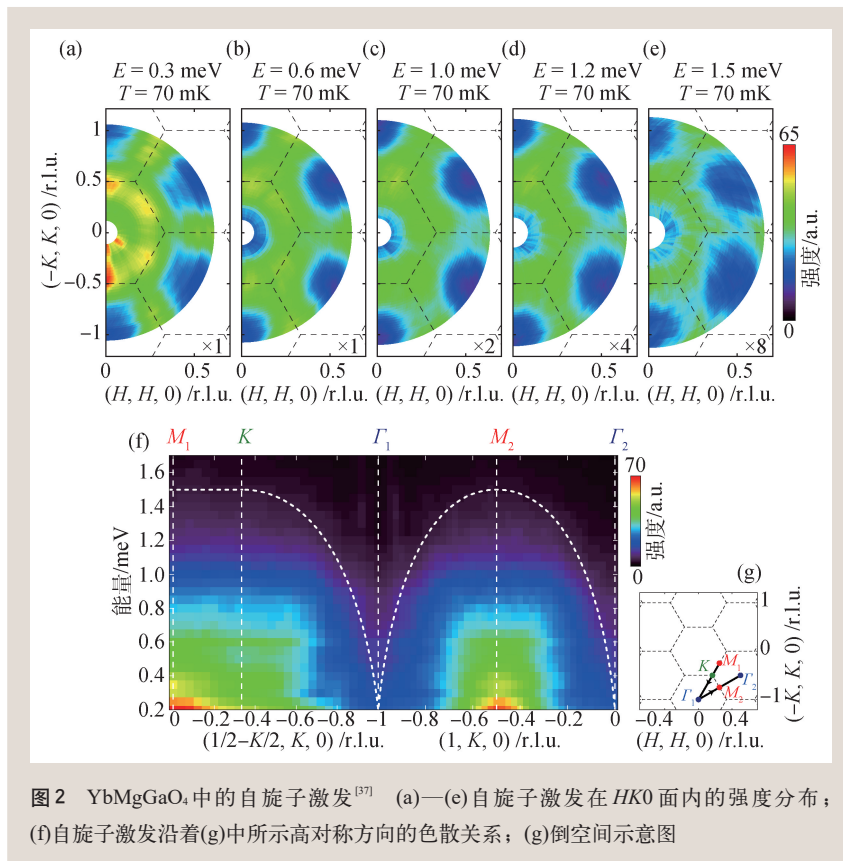


图 2 YbMgGaO<sub>4</sub> 中的自旋子激发<sup>[37]</sup> (a)–(e) 自旋子激发在 HKO 面内的强度分布；(f) 自旋子激发沿着 (g) 中所示高对称方向的色散关系；(g) 倒空间示意图

子激发过程中，费米面以下的自旋子被激发到费米面以上，形成了粒子—空穴对<sup>[38, 39]</sup>，即两个自旋子，其能量和动量与被散射中子整体守恒，但单个自旋子的动量能量并不唯一，这也是连续谱的由来。需要注意的是，自旋子的成对出现并不是中子散射导致的结果，而是源自量子自旋液体内禀的量子纠缠。计算得到的自旋子激发谱与实验数据高度吻合(图3(b))。作为对比，我们同时计算了狄拉克量子自旋液体的激发谱，与实验结果相差甚远<sup>[37]</sup>。

## 2.2 自旋子激发在外场下的变化

接下来我们进一步研究了YbMgGaO<sub>4</sub>中的自旋子激发在外场下的变化<sup>[40]</sup>。在2.5 T的竖直外场下(即场沿着*c*方向)，其自旋激发依然是非常宽的连续谱(图4(a))，说明量子自旋液体基态在弱场下并没有被完全破坏。但同时，自旋子激发的形状发生了重整，原本被压制的 $\Gamma$ 点信号在0.6 meV左右被加强，形成了一个X形的边界；而在更低能，依旧存在一个V字形的边界。这是自旋子激发的独有特征，和一维反铁磁链中的自旋子激发相类似，零场时自旋向上和自旋向下的自旋子能带能量简并，而在外场下发生塞曼劈裂(图3(c))，不同自旋的自旋子能带分别往高能 and 低能移动<sup>[41, 42]</sup>。此时的激发也分裂成两种不同的属性，当粒子—空穴对在同一个能带内会导致极化方向沿着*c*方向的激发，形成低能 $\Gamma$ 点V字形的边界。而当粒子—空穴分属不同的能带，对应的极化方向则在面内，在 $\Gamma$ 点形成X字形的边界，而

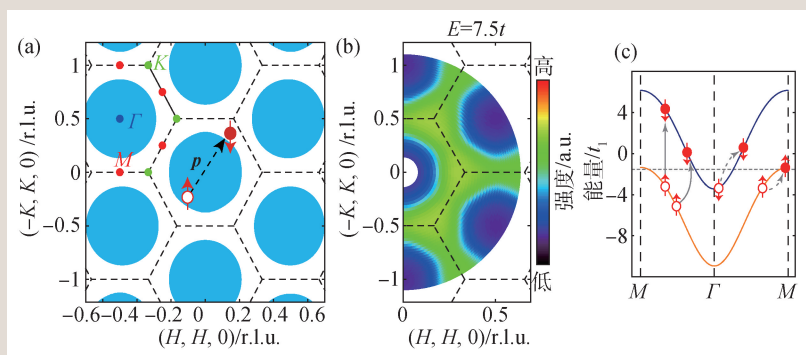


图3 费米面量子自旋液体中的自旋子激发<sup>[37, 40]</sup> (a)自旋子费米面及粒子—空穴对激发示意图；(b)计算得到的自旋子激发在动量空间的强度分布，*t*是最近邻自旋子跃迁能；(c)自旋子单粒子能带在外场下的塞曼劈裂和粒子—空穴对激发

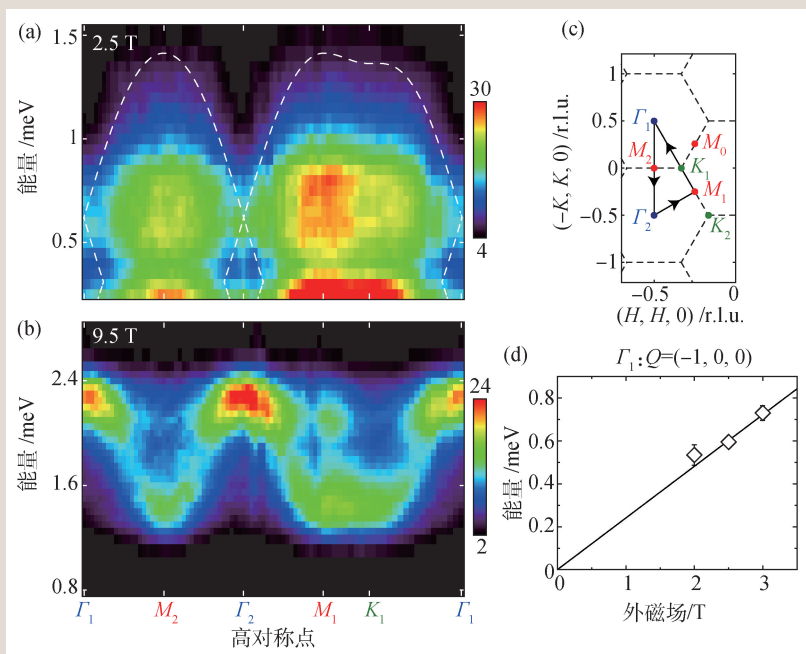


图4 YbMgGaO<sub>4</sub>的磁激发随外场的演化<sup>[40]</sup> (a, b)沿着(c)中所示高对称方向在2.5 T和9.5 T外场下的色散关系；(c)倒空间示意图；(d) $\Gamma$ 点X形边界交点能量随外场的变化关系

X的交点位置便是两个自旋子能带塞曼劈裂的能量<sup>[43]</sup>。为了验证这一点，我们测量了 $\Gamma$ 点信号随外场的变化，发现X交点位置基本随外场线性增加(图4(d))，符合理论预期。

当外场足够大的时候，系统被极化，量子自旋液体态被破坏，自旋子激发变成磁振子激发。实验上我们也的确观测到9.5 T高场下的磁激发是比零场或者低场更尖锐的自旋波激发(图4(b))，这一点也进一步说明了零场及弱场下很可能是自旋子费米面量子自旋液体行为。



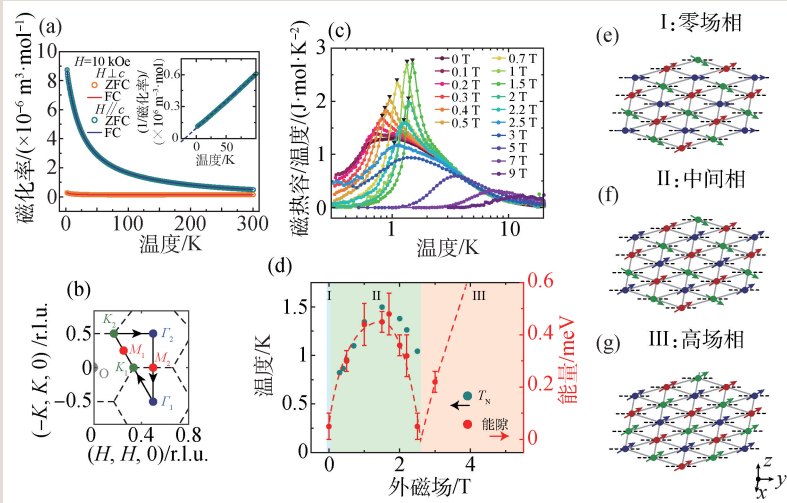


图5 TmMgGaO<sub>4</sub>的磁性相图<sup>[60, 61]</sup> (a)外场沿着晶体不同方向时的磁化率(ZFC是零场冷却, FC是场冷却), 插图是磁化率倒数, 虚线是居里—外斯拟合; (b)倒空间示意图; (c)不同外场下扣除声子贡献之后的磁性比热, 倒三角对应着磁有序相变温度; (d)磁性相图, 包括从比热数据得到的磁有序温度和非弹性中子散射测量到的K点自旋能隙大小。相图分为三个相: (e)零场相, 自旋S<sup>z</sup>分量上一下一零; (f)中间相, 即准平台相, 两上一下一; (g)高场相, 即极化相

YbMgGaO<sub>4</sub>中的连续谱激发已经被不同的研究证实<sup>[44-46]</sup>, 但出现费米面自旋液体态、共振价键态等不同的解读<sup>[45, 47-55]</sup>。也有研究组认为Mg/Ga无序在这里起到了主导作用, 假设磁相互作用 $J$ 有很大的无序性, 呈高斯分布, 高斯分布的半高宽高达 $J$ 平均值的~100%(方差~0.2), 这样可以使得自旋波展宽成连续谱<sup>[46]</sup>。但是目前尚无证据表明层间无磁Mg/Ga无序可以产生如此大的磁相互作用无序。

此外, 有研究发现交流磁化率在0.1 K左右呈现一个随频率而变化的峰, 并推测其中约有15%的自旋发生了冻结<sup>[46]</sup>, 这和缪子自旋弛豫测量在60 mK 仍然没有发现自旋冻结的结果不同<sup>[35, 36]</sup>。有研究组提出低能激发或者自旋的慢动力学行为也会导致低温下交流磁化率峰<sup>[56]</sup>, 因此交流磁化率峰的起源有待进一步研究。比热测量表明该体系的磁熵在0.1 K时已经被释放了近99%<sup>[32, 34]</sup>, 不足以驱动一个自旋玻璃相变。有趣的是, 最近的极低温直流磁化率测量在0.1 K附近没有观察到自旋冻结导致的场冷和零场冷磁化率曲线的劈裂行为<sup>[55]</sup>, 支持自旋在低温下仍然是动态的结论, 符合量子自旋液体的行为。

热导率测量是研究量子自旋液体基态的重要手段。一般理论认为, 无能隙的量子自旋液体其低温热导率将会呈现一个剩余线性项<sup>[25]</sup>, 而有能隙的量子自旋液体则没有热导的剩余线性项<sup>[26]</sup>。但是在具体的实验测量中, 有研究组指出热导率的测量显著地受到样品的降温速率以及样品中无序度的影响, 因此只有在无序度极小的无能隙量子自旋液体样品中才有可能观测到剩余热导率<sup>[57]</sup>。早期YbMgGaO<sub>4</sub>的热导率测量没有发现剩余热导率, 似乎表明体系中没有巡游的无能隙自旋子, 或者自旋子被样品中的晶格无序散射因而不贡献剩余热导<sup>[58]</sup>。由于YbMgGaO<sub>4</sub>是一个二

维性非常强的体系,  $c$ 方向的晶格常数高达25.1 Å, 因此其热输运性质会呈现非常强的各向异性。最近中国科学技术大学的孙学峰小组及合作者仔细测量了高质量YbMgGaO<sub>4</sub>单晶样品热导率的各向异性, 发现热导率沿着 $ab$ 面有明显的剩余热导, 而 $c$ 方向则没有剩余热导, 这与二维三角格子中的自旋子费米面量子自旋液体态的行为吻合<sup>[59]</sup>。另一方面, 相同结构的TmMgGaO<sub>4</sub>表现出尖锐的自旋波激发<sup>[60, 61]</sup>, 说明结构无序对这一类结构的自旋激发谱影响较小。最近, 在结构无序更小的Yb基三角格子自旋液体候选材料NaYbSe<sub>2</sub>和NaYbO<sub>2</sub>中也观测到了连续谱激发<sup>[62, 63]</sup>。这些研究都表明Yb基三角格子中的连续谱激发很可能来自于本征的自旋子激发, 而不是简单的结构无序导致的结果。

### 2.3 其他量子自旋液体候选材料

YbMgGaO<sub>4</sub>的发现及研究为人们理解量子自旋液体提供了一个新的视角, 更多的研究者开始关注稀土元素阻挫体系。其中112体系 $ALnCh_2$ 最受关注( $A$  = 碱金属,  $Ln$  = 镧系金属,  $Ch$  = 氧族

元素), 整个家族都具有准二维的三角格子结构。在几个 112 材料初步测量中都发现了量子自旋液体的行为<sup>[63–65]</sup>, 尤其是前面提到的 NaYbSe<sub>2</sub> 单晶非弹性中子散射实验, 观测到了与 YbMgGaO<sub>4</sub> 的色散关系非常相似的连续谱激发<sup>[62]</sup>, 表明这两个体系很有可能同属于自旋子费米面量子自旋液体。

稀土元素阻挫体系的研究不局限于三角格子, 阻挫更强的笼目格子也获得了广泛的关注, 比如 Ln<sub>3</sub>Sb<sub>3</sub>Mg<sub>2</sub>O<sub>14</sub> 和 Ln<sub>3</sub>Sb<sub>3</sub>Zn<sub>2</sub>O<sub>14</sub> 体系<sup>[66, 67]</sup>, 但由于目前无法生长高质量的单晶样品, 进一步深入的实验研究还比较缺乏。

### 3 量子伊辛系统

不同于量子自旋液体, 过去在横场诱导的量子伊辛模型的研究主要集中在二维体系中, 且横场一般由外磁场提供, 二维量子伊辛模型的研究则相对较少<sup>[68]</sup>, 实验方面的研究就更为缺乏。但作为一个非常重要的物理模型, 它可以呈现出非常新奇的物理性质。我们最近的研究发现, TmMgGaO<sub>4</sub> 很可能是一个三角格子横场伊辛模型材料。

#### 3.1 TmMgGaO<sub>4</sub> 中的磁性

TmMgGaO<sub>4</sub> 与 YbMgGaO<sub>4</sub> 有相同的晶格结构, 早期也有报道<sup>[31]</sup>, 后来由普林斯顿大学的 R. J. Cava 组重新合成<sup>[69]</sup>。Tm<sup>3+</sup> 的总角动量  $J = 6$  ( $S = 1, L = 5$ ), 在晶体场下劈裂成 4 组双重态和 5 个单态。能量最低的是由两个相距 1 meV 以下的单态组成的准双重态<sup>[70]</sup>。同时, 这两个单态的波函数主要由  $J^z = \pm 6$  组成, 因而表现为易轴沿着  $c$  方向的伊辛有效自旋 1/2<sup>[60]</sup>。有意思的是, 两个单态之间的能级差可以等价为一个内禀横场<sup>[71]</sup>。与外加横场

不同, 内禀横场数值基本固定, 且分布均匀, 因此我们提出 TmMgGaO<sub>4</sub> 的有效哈密顿量是罕见的内禀横场伊辛模型。进一步考察晶体场基态波函数发现, 有效自旋  $z$  方向的分量  $S^z$  呈现出常规的偶极矩行为, 但是面内的  $S^x/S^y$  分量则呈现出多极矩的行为, 使得 TmMgGaO<sub>4</sub> 对于沿着面内方向的外场几乎没有响应, 这一点被磁化率测量所证实(图 5(a))。零场比热虽然没有观测到明显的相变行为, 但是在 0.6—1 K 之间存在异常(图 5(b))。为了进一步考察其中的磁性, 我们用中子散射测量了 TmMgGaO<sub>4</sub> 的磁结构和磁激发行为<sup>[60]</sup>。

中子衍射实验在  $K$  点发现了非常强的磁性布拉格峰(图 6(a)), 说明其基态是一个三子格序。沿着面外  $c$  方向磁布拉格峰的强度变化缓慢, 表明它是一个天然的准二维磁体(图 6(b))。磁性布拉格峰的强度在 0.4 K 以下饱和, 在 1 K 左右几乎完全消失(图 6(c), (d))。非弹性散射发现了较为尖锐的自旋波激发, 最低能的信号集中在布拉格峰  $K$  点附近, 随着能量升高向外色散到磁布里渊区边界  $\Gamma$  点消失, 磁激发带宽约为 1.5 meV(图 7(a))。

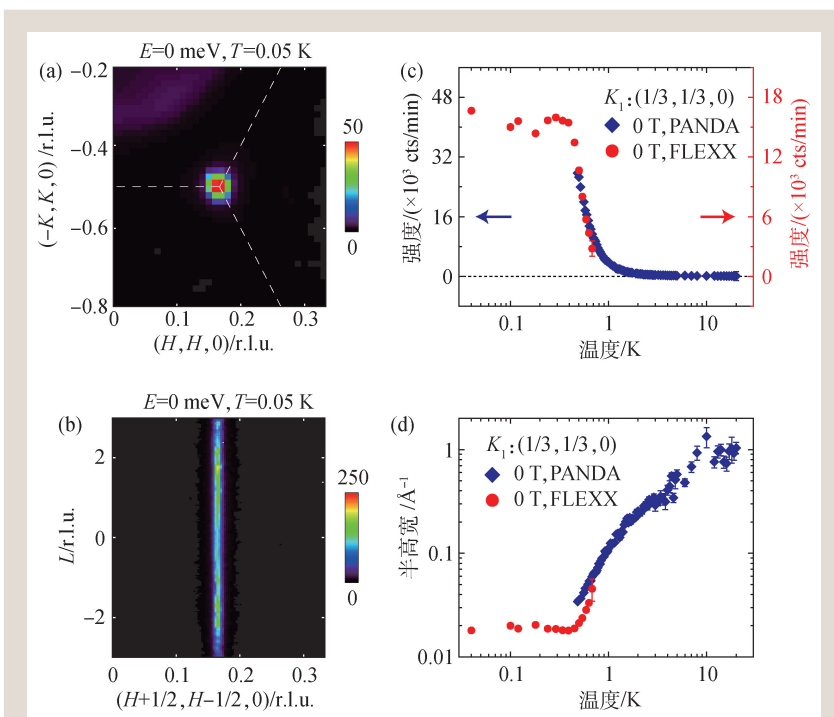


图 6 TmMgGaO<sub>4</sub> 零场下的  $K$  点磁性布拉格峰<sup>[60, 61]</sup> (a) 布拉格峰在面内的分布; (b) 布拉格峰在面外的分布; (c) 布拉格峰的强度随温度的变化; (d) 布拉格峰半高宽随温度的变化。(c) 和 (d) 的数据来自 PANDA 和 FLEXX 中子谱仪

仔细研究 $K$ 点的行为可以观测到一个较小的自旋能隙, 约在 $0.07\text{ meV}$ 左右。随着温度升高, 自旋能隙逐渐关闭。

对于横场伊辛模型, 横场产生的量子涨落会使得原本磁矩大小固定的伊辛自旋在不同的格点产生不同的调制, 其低温基态是自旋上一下一零的三子格序, 其中自旋向上和向下的磁矩大小被量子涨落压制, 第三个格子的波函数中自旋向上和向下拥有同样的振幅, 因此 $z$ 方向自旋为零。从平均场角度考虑, 模型可以等效为磁矩固定的自旋往横场方向(这里设定为 $y$ 方向)偏转(图5(e)),  $S^y$ 形成了铁多极矩隐藏序, 但不对外场或中子响应, 因而中子衍射只能测量到 $S^z$ 分量。对于经典磁激发,  $S^z$ 的磁激发只有 $S_{xx}/S_{yy}$ 分量。但对于 $\text{TmMgGaO}_4$ ,  $S^x/S^y$ 的偶极矩行为使得中子散射无法探测 $S_{xx}/S_{yy}$ , 只能观测到 $S_{zz}$ 。同时 $S_{zz}$ 也直接对应着量子激发, 来源于量子涨落导致的

$S^z$ 的变化, 类似于一维材料中的纵向激发<sup>[72]</sup>。基于横场伊辛模型的平均场计算结果与我们的数据高度吻合(图7(f))。为了进一步研究其磁矩内部结构, 我们用极化中子散射分析了 $\text{TmMgGaO}_4$ 的磁有序和磁激发行为, 结果表明, 其磁布拉格峰只有 $S^z$ 的分量, 而磁激发也只有 $S_{zz}$ 的分量<sup>[61]</sup>。这显著的区别于传统自旋波激发只有横向分量的特征, 进一步证明了 $\text{TmMgGaO}_4$ 的横向分量形成了多极矩隐藏序, 而纵向分量形成偶极矩序的特殊结构。

### 3.2 $\text{TmMgGaO}_4$ 的加场相图

由于 $\text{TmMgGaO}_4$ 中的横场源自晶体场, 我们可以额外加一个纵向的外场来调控它的性质<sup>[61]</sup>。实验表明, 加场之后低温比热出现了明显的相变行为(图5(c)), 其相变温度随着外场增大而

先升高后降低, 最高点在 $1.5\text{ T}$ 左右(图5(d))。中子衍射测量发现, 相变温度以下的磁性布拉格峰依然在 $K$ 点, 其强度与相变温度呈正相关(图8), 同样呈正相关的还有自旋能隙和磁激发强度(图7), 整个行为完全符合横场伊辛模型的预期<sup>[73]</sup>。外加纵场等效于额外的经典贡献, 与横场导致的量子涨落相互竞争, 使得 $1.5\text{ T}$ 以下量子行为被压制, 经典的伊辛作用增强了磁有序, 因此随着外场变大, 磁布拉格峰逐渐增强, 自旋能隙同时变大, 由于 $S_{zz}$ 可以认为是该体系的量子激发, 因此磁激发则变弱。随着外场继续增加, 系统逐渐靠近 $2.7\text{ T}$ 附近的临界点, 量子涨落重新增强, 因此 $1.5\text{ T}$ 之上磁性布拉格峰转而变弱, 自旋能隙随着变小而磁激发则反而增强。

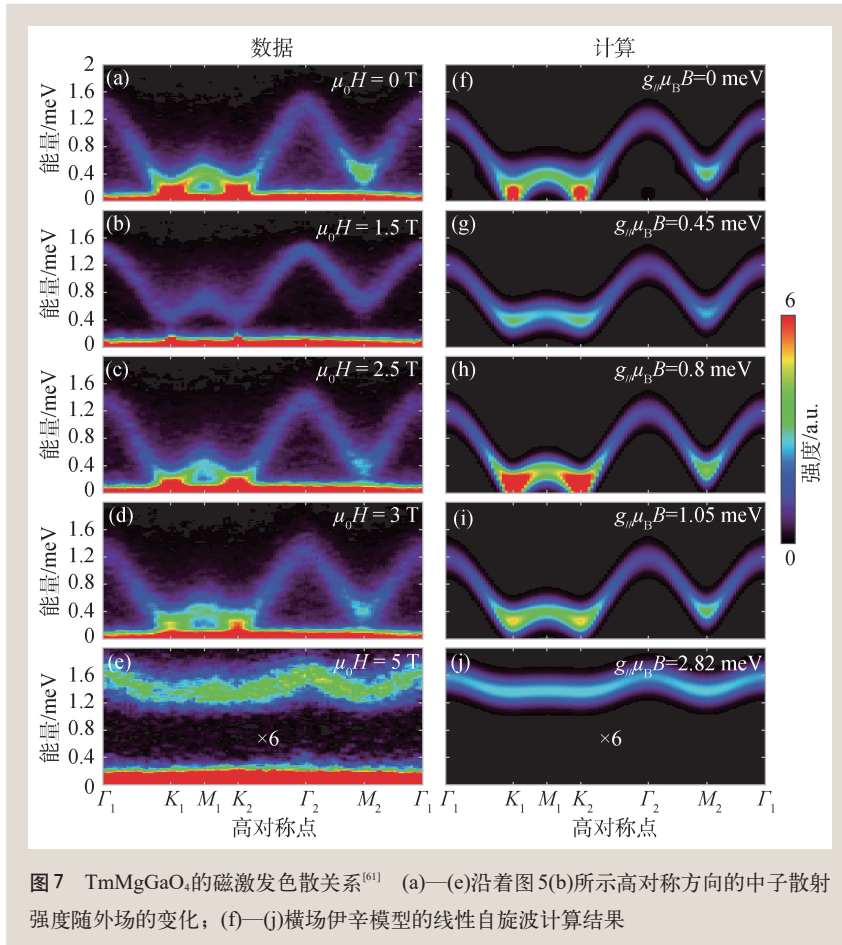


图7  $\text{TmMgGaO}_4$ 的磁激发色散关系<sup>[61]</sup> (a)–(e)沿着图5(b)所示高对称方向的中子散射强度随外场的变化; (f)–(j)横场伊辛模型的线性自旋波计算结果



加场相图也可以用平均场方法来模拟,经典的伊辛模型在外场下可以形成磁矩两上一下的平台相,量子涨落使得 $\text{TmMgGaO}_4$ 加场后为准平台相,即 $S^z$ 分量依然为两上一下但磁矩向 $y$ 轴倾斜,随着外场变化倾斜程度各不相同(图5(f)).2.7 T以上系统进入极化的无序态,三子格序被破坏(图5(g)).计算得到的激发谱和实验结果也基本吻合(图7).需要注意的是

是,横场导致的局域量子涨落已经包括在平均场方法中,但由于伊辛作用和横场不对易,因此局域的量子涨落会扩散变得更加长程,这部分量子涨落超越了平均场方法,会使得磁相互作用常数发生重整.这部分长程的量子涨落可以通过量子蒙特卡罗进行计算<sup>[73-75]</sup>,得到的次近邻和最近邻相互作用的比值与平均场方法相接近.

另外,有研究组认为 $\text{TmMgGaO}_4$ 的物理性质可能由Mg/Ga结构无序主导,并通过严格对角化计算预言外场下磁激发无能隙<sup>[70]</sup>,但这与实验上观测到的自旋激发能隙明显不符.此外有理论预言三角格子和笼目格子伊辛模型的磁相变是两个Berezinskii—Kosterlitz—Thouless(BKT)相变,两个相变中间则是一个具有涌现 $U(1)$ 对称性的准长程BKT相<sup>[73, 76-78]</sup>.最近的核磁共振实验报道了 $\text{TmMgGaO}_4$ 中在约1 K至2 K之间涨落增强的现象,作者认为是BKT相的一个证据<sup>[79]</sup>.BKT相的重要特征是发散的自旋关联长度和磁化率<sup>[75, 77, 80]</sup>,然而最近实验发现的是有限的自旋关联长度和有

## 参考文献

[1] Ramirez A. *Annu. Rev. Mater. Sci.*, 1994, 24: 453  
 [2] Balents L. *Nature*, 2010, 464: 199  
 [3] Lee P A. *Science*, 2008, 421: 1306  
 [4] Zhou Y, Kanoda K, Ng T K. *Rev. Mod. Phys.*, 2017, 89: 025003  
 [5] Savary L, Balents L. *Rep. Prog. Phys.*, 2017, 80: 016502  
 [6] Broholm C, Cava R J, Kivelson S A *et al.* *Science*, 2020, 367: 263  
 [7] Anderson P W. *Mater. Res. Bull.*, 1973, 8: 153  
 [8] Anderson P W. *Science*, 1987, 235: 1196  
 [9] Ioffe L B, Feigel'man M V, Ioselevich A *et al.* *Nature*, 2002, 415: 503

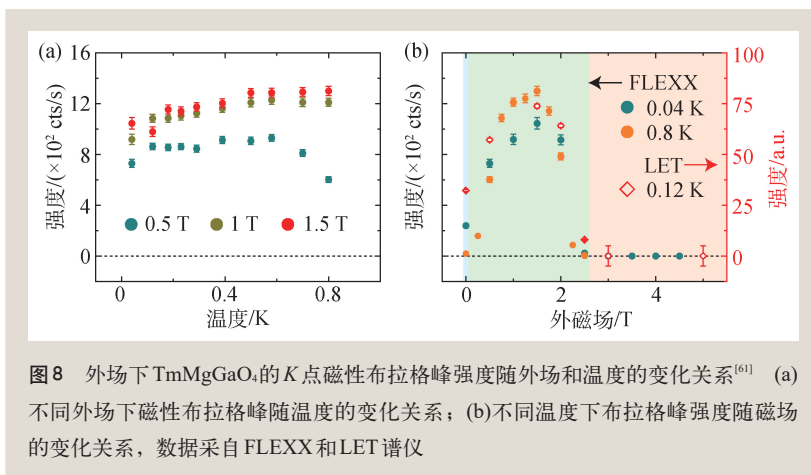


图8 外场下 $\text{TmMgGaO}_4$ 的 $K$ 点磁性布拉格峰强度随外场和温度的变化关系<sup>[61]</sup> (a)不同外场下磁性布拉格峰随温度的变化关系; (b)不同温度下布拉格峰强度随磁场的变化关系,数据采自FLEXX和LET谱仪

限的磁化率<sup>[60, 61, 70, 79, 81]</sup>,引发了进一步的研究<sup>[82]</sup>.

## 4 总结与展望

过去对于稀土元素阻挫材料的研究主要集中在三维的烧绿石材料中,探索有关自旋冰或者量子自旋冰的行为<sup>[83]</sup>,近十年来这类研究依旧持续<sup>[84]</sup>.而 $\text{YbMgGaO}_4$ 的发现引发了更多二维稀土阻挫材料的研究,尤其是三角格子体系,在 $\text{YbMgGaO}_4$ 被提出以后,相继又有 $\text{NaYbSe}_2$ 、 $\text{KBaYb(BO}_3)_2$ 等多个Yb-基三角格子以及其他稀土元素的三角格子量子自旋液体候选材料被发现和提出<sup>[85-87]</sup>,引发了相关研究的热潮.而且相关的研究不仅仅局限在量子自旋液体体系,比如 $\text{TmMgGaO}_4$ 便为二维横场伊辛模型这个重要的理论模型提供了实验研究的契机.通过改变稀土元素,调节晶体场参数,我们可以继续探索包括隐藏序<sup>[88]</sup>、自旋碎片化<sup>[89]</sup>、弦激发<sup>[90]</sup>等等在内的更多新奇的物理现象.

[10] Fennell T, Deen P P, Wildes A R *et al.* *Science*, 2009, 326: 415  
 [11] Santini P, Carretta S, Amoretti G *et al.* *Rev. Mod. Phys.*, 2009, 81: 807  
 [12] Coldea R, Tennant D A, Wheeler E M *et al.* *Science*, 2010, 327: 177  
 [13] Faure Q, Takayoshi S, Petit S *et al.* *Nat. Phys.*, 2018, 14: 716  
 [14] Yamashita S, Nakazawa Y, Oguni M *et al.* *Nat. Phys.*, 2008, 4: 459  
 [15] Ito S, Kurita N, Tanaka H *et al.* *Nat. Commun.*, 2017, 8: 235  
 [16] Han T H, Helton J, Chu S *et al.* *Nature*, 2012, 492: 406



- [17] Norman N R. *Rev. Mod. Phys.*, 2016, 88:041002
- [18] Banerjee A, Yan J, Knolle J *et al.* *Science*, 2017, 356: 1055
- [19] Hermanns M, Kimchi I, Knolle J. *Annu. Rev. Condens. Matter Phys.*, 2018, 9: 17
- [20] Gazza C J, Ceccatto H A. *J. Phys.: Condens. Matter*, 1993, 5: L135
- [21] Li P H Y, Bishop R F, Campbell C E. *Phys. Rev. B*, 2015, 91: 014426
- [22] Li Y D, Wang X, Chen G. *Phys. Rev. B*, 2016, 94:035107
- [23] Wen X G. *Phys. Rev. B*, 2002, 65: 165113
- [24] Motrunich O I. *Phys. Rev. B*, 2005, 72:045105
- [25] Yamashita M, Nakata N, Senshu Y *et al.* *Science*, 2010, 428: 1246
- [26] Yamashita M, Nakata N, Kasahara Y *et al.* *Nat. Phys.*, 2009, 5: 44
- [27] Lake B, Tennant D A, Frost C D *et al.* *Nat. Mater.*, 2005, 4: 329
- [28] Mourigal M, Enderle M, Klopfferpieper A *et al.* *Nat. Phys.*, 2013, 9: 435
- [29] Shirane G, Shapiro S M, Tranquada J M. *Neutron scattering with a triple-axis spectrometer.* Cambridge: Cambridge University Press, 2002
- [30] 沃弘樑, 王奇思, 沈瑶 等. *物理*, 2019, 48: 790
- [31] Kimizuka N, Takayama E. *J. Solid State Chem.*, 1982, 41: 166
- [32] Li Y, Liao H, Zhang Z *et al.* *Sci. Rep.*, 2015, 5: 16419
- [33] Li Y, Adroja D, Bewley R I *et al.* *Phys. Rev. Lett.*, 2017, 118: 107202
- [34] Li Y, Chen G, Tong W *et al.* *Phys. Rev. Lett.*, 2015, 115: 167203
- [35] Li Y, Adroja D, Biswas P K *et al.* *Phys. Rev. Lett.*, 2016, 117: 097201
- [36] Ding Z, Zhu Z, Zhang J *et al.* *Phys. Rev. B*, 2020, 102:014428
- [37] Shen Y, Li Y D, Wo H *et al.* *Nature*, 2016, 540: 559
- [38] Li Y D, Lu Y M, Chen G. *Phys. Rev. B*, 2017, 96:054445
- [39] Li Y D, Shen Y, Li Y *et al.* *Phys. Rev. B*, 2018, 97: 125105
- [40] Shen Y, Li Y D, Walker H C *et al.* *Nat. Commun.*, 2018, 9: 4138
- [41] Dender D C, Hammar P R, Reich D H *et al.* *Phys. Rev. Lett.*, 1997, 79: 1750
- [42] Halg M, Huvonen D, Butch N P *et al.* *Phys. Rev. B*, 2015, 92: 104416
- [43] Li Y D, Chen G. *Phys. Rev. B*, 2017, 96:075105
- [44] Paddison J A M, Daum M, Dun Z *et al.* *Nat. Phys.*, 2016, 13: 117
- [45] Li Y, Adroja D, Voneshen D *et al.* *Nat. Commun.*, 2017, 8: 15814
- [46] Ma Z, Wang J, Dong Z Y *et al.* *Phys. Rev. Lett.*, 2018, 120: 087201
- [47] Luo Z X, Lake E, Mei J W *et al.* *Phys. Rev. Lett.*, 2018, 120: 037204
- [48] Zhang X, Mahmood F, Daum M *et al.* *Phys. Rev. X*, 2018, 8: 031001
- [49] Luo Q, Hu S, Xi B *et al.* *Phys. Rev. B*, 2017, 95: 165110
- [50] Zhu Z, Maksimov P A, White S R *et al.* *Phys. Rev. Lett.*, 2018, 120: 207203
- [51] Wu M, Yao D X, Wu H Q. *Phys. Rev. B*, 2021, 103: 205122
- [52] Zhu Z, Maksimov P A, White S R *et al.* *Phys. Rev. Lett.*, 2017, 119: 157201
- [53] Kimchi I, Nahum A, Senthil T. *Phys. Rev. X*, 2018, 8: 031028
- [54] Parker E, Balents L. *Phys. Rev. B*, 2018, 97: 184413
- [55] Li Y, Bachus S, Liu B *et al.* *Phys. Rev. Lett.*, 2019, 122: 137201
- [56] Balz C, Lake B, Reuther J *et al.* *Nat. Phys.*, 2016, 12: 942
- [57] Yamashita M, Sato Y, Tominaga T *et al.* *Phys. Rev. B*, 2020, 101: 140407
- [58] Xu Y, Zhang J, Li Y S *et al.* *Phys. Rev. Lett.*, 2016, 117: 267202
- [59] Rao X, Hussain G, Huang Q *et al.* 2021, arXiv: 2107.01585, *Nat. Commun.*, accepted
- [60] Shen Y, Liu C, Qin Y *et al.* *Nat. Commun.*, 2019, 10: 4530
- [61] Qin Y, Shen Y, Liu C *et al.* 2020, arXiv: 2011.09376
- [62] Dai P L, Zhang G, Xie Y *et al.* *Phys. Rev. X*, 2021, 11: 021044
- [63] Bordelon M M, Kenney E, Liu C *et al.* *Nat. Phys.*, 2019, 15: 1058
- [64] Liu W, Zhang Z, Ji J *et al.* *Chin. Phys. Lett.*, 2018, 35: 117501
- [65] Ding L, Manuel P, Bachus S *et al.* *Phys. Rev. B*, 2019, 100: 144432
- [66] Sanders M B, Krizan J W, Cava R J. *J. Mater. Chem. C*, 2016, 4: 541
- [67] Dun Z L, Trinh J, Lee M *et al.* *Phys. Rev. B*, 2017, 95: 104439
- [68] Moessner M, Sondhi S L, Chandra P. *Phys. Rev. B*, 2000, 62: 4457
- [69] Cevallos F A, Stolze K, Kong T *et al.* *Mater. Res. Bull.*, 2018, 105: 154
- [70] Li Y, Bachus S, Deng H *et al.* *Phys. Rev. X*, 2020, 10: 011007
- [71] Chen G. *Phys. Rev. Research*, 2019, 1: 033141
- [72] Grenier B, Simonet V, Canals B *et al.* *Phys. Rev. B*, 2015, 92: 134416
- [73] Liu C, Huang C J, Chen G. *Phys. Rev. Research*, 2020, 2: 043013
- [74] Li H, Liao Y D, Chen B B *et al.* *Nat. Commun.*, 2020, 11: 1111
- [75] Liao Y D, Li H, Yan Z *et al.* *Phys. Rev. B*, 2021, 103: 104416
- [76] Isakov S V, Moessner R. *Phys. Rev. B*, 2003, 68: 104409
- [77] Damle K. *Phys. Rev. B*, 2015, 115: 127204
- [78] Wang Y C, Qi Y, Chen S *et al.* *Phys. Rev. B*, 2017, 96: 115160
- [79] Hu Z, Ma Z, Liao Y D *et al.* *Nat. Commun.*, 2020, 11: 5631
- [80] Biswas S, Demle K. *Phys. Rev. B*, 2018, 97: 085114
- [81] Dun Z, Daum M, Baral R *et al.* *Phys. Rev. B*, 2021, 103: 064424
- [82] Huang C J, Wang X, Wang Z *et al.* 2020, arXiv: 2011.05919
- [83] Gingras M J P, McClarty P A. *Rep. Prog. Phys.*, 2014, 77: 056501
- [84] Gao B, Chen T, Tam D W *et al.* *Nat. Phys.*, 2019, 15: 1052
- [85] Sanders M B, Cevallos F A, Cava R J. *Mater. Res. Express*, 2017, 4: 036102
- [86] Zeng K Y, Ma L, Gao Y X *et al.* *Phys. Rev. B*, 2020, 102: 045149
- [87] Cho H, Blundell S J, Shiroka T *et al.* 2021, arXiv: 2104.01005
- [88] Liu C, Li Y D, Chen G. *Phys. Rev. B*, 2018, 98: 045119
- [89] Paddison J A M, Ong H S, Hamp J O *et al.* *Nat. Commun.*, 2016, 7: 13842
- [90] Zhou Z, Liu C, Yan Z *et al.* 2020, arXiv: 2010.01750