

Kitaev 自旋液体材料 α -RuCl₃ 的莫特物性及电子隧穿谱学研究进展

冯磊^{1,2}, 高磊², 郑晓虎^{1,3†}

1) (北京量子信息科学研究院 北京, 100193 中国)

2) (北京科技大学新材料技术研究院腐蚀与防护中心 北京, 100083 中国)

3) (集成电路材料全国重点实验室 中国科学院上海微系统与信息技术研究所
上海, 200050 中国)

摘要

量子自旋液体是强关联体系中突破传统磁有序的新奇量子态, Kitaev 量子自旋液体因具备精确可解性、拓扑序与非阿贝尔 Majorana 自旋子激发, 成为拓扑量子计算的核心研究体系。本文系统综述 Kitaev 自旋液体的莫特(Mott)物理性质与 Majorana 自旋子电子隧穿谱学研究进展。首先介绍 Kitaev 量子自旋液体与几何阻挫型量子自旋液体的区别, 以及其拓扑特性与分数化激发机制, 指出 α -RuCl₃ 是最具潜力的实验载体, 其兼具准二维蜂窝结构、强自旋-轨道耦合与 Mott 绝缘体性质, 非弹性中子散射、拉曼光谱、热霍尔效应等已观测到符合分数化激发特征的信号, 但磁激发本源、量子化热导起源等关键问题仍存在争议。随后重点阐述电子隧穿谱学, 尤其是扫描隧道显微镜/扫描隧道谱在 Majorana 自旋子探测中的独特潜力, 梳理非弹性隧穿与自旋-电荷解耦-复合两类隧穿机制, 总结 α -RuCl₃ 莫特能隙的温度与维度依赖规律、薄层样品中非公度电子态调制等重要实验结果。最后分析当前材料缺陷、隧穿信噪比与信号解析等瓶颈, 展望通过高质量薄膜制备、多外场协同调控与高分辨隧穿表征, 获取 Majorana 激发直接谱学证据的发展方向, 为 Kitaev 自旋液体的实验验证与拓扑量子应用奠定基础。

关键词：Kitaev 量子自旋液体，Majorana 自旋子，电子隧穿谱，莫特绝缘体

PACS: 75.10.Kt , 05.30.Pr, 73.23.Hk, 68.37.Ef

基金：国家量子科学技术创新计划（2023ZD0300500）;集成电路材料国家重点实验室开放课题 (SKLJC-K2025-05)

†通讯作者，E-mail: zhengxh@baqis.ac.cn

第一作者，E-mail: m202421602@xs.ustb.edu.cn

录用稿件，非最终出版稿

1. 引言

量子自旋液体(quantum spin liquid-QSL)是强关联电子体系中一类由自旋阻挫与强量子涨落协同主导,即便在绝对零度极限下也不会自发形成长程磁序、无局域对称性自发破缺的新奇量子物态^[1,2]。这一开创性的物理图像最早由 P. W. Anderson 基于共振价键 (Resonating valence bond, RVB) 理论提出,突破了传统朗道对称性破缺的物态分类框架,为凝聚态物理提供了全新方向^[3,4]。自旋阻挫是 QSL 得以实现的核心前提,其通用物理内涵为:自旋体系中交换相互作用之间存在内禀的不相容性,不存在任何经典自旋构型能够同时极小化所有交换键的相互作用能,进而形成高度简并的低能基态流形,极大地放大了量子涨落的效应。根据阻挫的物理起源与实现机制,可将其分为几何阻挫(经典起源阻挫)与量子阻挫(内禀量子起源阻挫)两大核心类别,二者分别对应了 QSL 研究中两条最为主流的理论与实验路径。其中,几何阻挫是最早被系统研究自旋阻挫实现方式,其阻挫效应完全源于晶格的几何拓扑结构,具有明确的经典对应。在三角、笼目 (Kagome)、烧绿石等非二分、非共面的阻挫晶格中,当格点间存在近邻各向同性反铁磁交换相互作用时,晶格的空间排布会导致相邻交换键对自旋取向的约束彼此矛盾:任意一个自旋都无法同时满足与所有近邻自旋反平行排列的能量最低要求,不存在任何经典自旋有序构型能让全部交换键同时达到能量极小值。这类阻挫在经典自旋极限下便已内禀存在,与量子涨落无关;而低温下的量子涨落会进一步解除经典基态的简并,形成无长程磁序的 RVB 型 QSL 基态^[5]。

QSL 的另一核心标志性特征,是强关联效应下电子的电荷与自旋自由度分离,其物理本质根植于莫特 (Mott) 绝缘态物理:在强电子关联作用下,电荷自由度被局域在晶格格点上,体系打开宽的 Mott 能隙进入绝缘态;而自旋自由度

则摆脱了电荷的束缚，在强量子涨落的驱动下形成多种低能集体激发，最终使体系的低能物理完全由电中性的自旋激发主导。这种电荷-自旋分离效应会催生两类特征性的分数化准粒子激发：一类是服从费米统计、携带自旋 1/2 却呈电中性的准粒子—自旋子（spinon）；另一类是满足玻色统计、携带单位电子电荷却无自旋的准粒子—电荷子（chargon/holon）^[6]。由于自旋子承载了 QSL 低能区的核心物理信息，当前针对 QSL 的实验与理论研究，大多围绕自旋子的量子激发特性展开。

不同于上述依靠晶格几何拓扑实现经典阻挫的 RVB 型 QSL，理论物理学家 Alexei Kitaev 于 2006 年在二维蜂窝晶格上，基于键依赖的高度各向异性伊辛 (Ising) 自旋交换作用，提出了一类可严格求解的 $S=1/2$ 自旋阻挫模型，其基态为具有非平庸拓扑序的 QSL，这便是著名的 Kitaev QSL 模型^[7]。该模型的核心突破是实现了纯量子起源的内禀自旋阻挫，与几何阻挫形成了本质上的区分：如图 1 所示，蜂窝晶格本身是二分晶格，不存在经典几何阻挫，然而 Kitaev 模型呈现一种独特的量子阻挫：—哈密顿量在三个不等价的键方向上分别引入仅耦合单一自旋分量的交换相互作用（x 键： $\sigma^x \sigma^x$ ，y 键： $\sigma^y \sigma^y$ ，z 键： $\sigma^z \sigma^z$ ）。在经典自旋图像中，自旋分量可同时取确定值，因此可以找到全局同时满足所有键对齐要求的构型，经典系统并无阻挫。但在量子力学中，三个泡利算符彼此不对易，一个自旋无法同时成为三个方向的本征态，任何量子态都不能使每个键上的能量期望值同时达到其绝对极小值。这种阻挫完全源于自旋算符的非对易性，无经典对应，其核心驱动力是量子涨落，因此被称为量子阻挫。该体系的完整哈密顿量可表示为：

$$H = J_x \sum_{\langle ij \rangle_x} \sigma_i^x \sigma_j^x + J_y \sum_{\langle ij \rangle_y} \sigma_i^y \sigma_j^y + J_z \sum_{\langle ij \rangle_z} \sigma_i^z \sigma_j^z$$

系统描述了键依赖的伊辛相互作用形式。

相较于几何阻挫型 QSL，量子阻挫型 Kitaev QSL 的核心优越性在于其可严格求解：可将模型严格映射为一套马约拉纳（Majorana）费米子算符与耦合的 Z_2 规范场（如图 2），清晰地揭示了其基态的长程量子纠缠与非阿贝尔拓扑序：即其低能激发支持受拓扑保护的费米子——未配对 Majorana 费米子与通量激发的复合态。这类非阿贝尔任意子的编织操作不受局域微扰的影响，天然具备容错特性，在理论上为拓扑量子信息存储与拓扑量子比特的实现提供了完美的物理载体。正因如此，Kitaev QSL 模型自提出以来便受到凝聚态物理领域的广泛关注，首次将 QSL 的基础研究与拓扑量子计算的应用前景直接深度绑定。与分数量子霍尔效应^[8]等其它支持非阿贝尔任意子的体系相比，Kitaev 型相互作用基于局域自旋体系实现，具有更高的相互作用能标，预示着拓扑保护的手征 Majorana 束缚态有望在更高的温度下被实验观测。凭借这一突出优势，Kitaev QSL 成为了衔接 QSL 理论预言与实验实现的核心纽带，为在真实磁性材料中寻找、验证并最终应用拓扑量子计算所需的新奇量子态，提供了最为清晰且可落地的理论蓝本。

Kitaev 模型与拓扑量子计算的深度关联，归纳起来其核心源于以下本征特性：1.体系本征支持分数化激发与 Z_2 规范场结构，低能激发包含 Majorana 自旋子等分数化准粒子，因此该 Kitaev QSL 也被归为 Z_2 型量子自旋液体；2.体系具有以长程量子纠缠为核心特征的拓扑序，可在晶格缺陷或体系边界处形成退耦合的非阿贝尔任意子激发——涡旋处束缚的 Majorana 零能模；3.模型具备严格可解性，可为拓扑量子计算的理论与实验验证提供可精准推演的理论框架。图 2b 给出了 Kitaev 模型随三键方向耦合强度演化的相图。其中 A 相为有能隙相，其

低能激发为满足对易关系的阿贝尔任意子；B 相为无能隙相，当引入外磁场、元素掺杂等外部扰动，破缺体系的时间反演对称性或空间反演对称性后，原本无能隙的体系会打开拓扑能隙，同时产生被称为 vison 的 Z_2 规范场元激发。此时体系将从 Z_2 型量子自旋液体转变为手征量子自旋液体，其边界处或缺陷处存在被 Z_2 规范场 (vison) 束缚住的未配对 Majorana 零能模；该束缚态满足非阿贝尔统计，其非对易编织操作可用于构建容错性极强的拓扑量子比特。

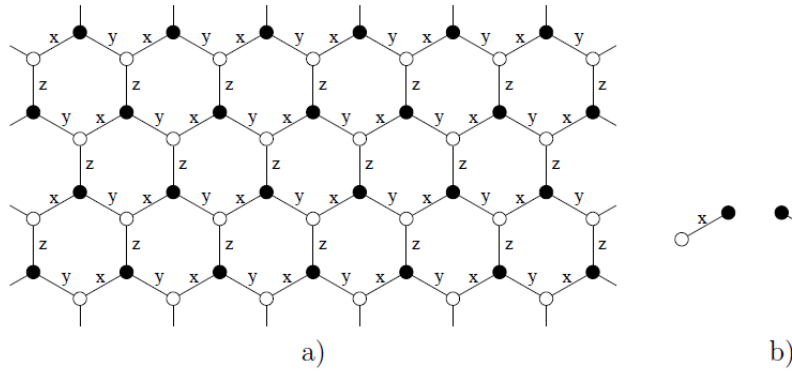


图 1. (a) Kitaev 蜂窝状晶格结构，每个格点为 1/2 自旋；(b) 连接每个格点的三个自旋耦合项。Reprinted from Ref.^[7].

Figure 1. (a) Kitaev honeycomb lattice structure, with each lattice point having a spin of 1/2; (b) Three spin coupling terms connecting each lattice point. Reprinted from Ref.^[7].

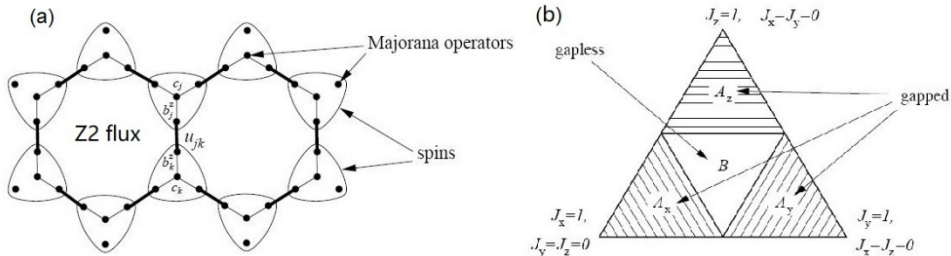


图 2. (a)在 Kitaev QSL 模型中一个自旋被一个巡游 Majorana 和三个局域 Majorana 算符表示，同时体系中出现 Z_2 规范场；(b)基于 x、y、z 方向上 Kitaev

耦合强度的相图，其中 A 相存在自旋激发能隙，B 相中自旋激发不存在能隙。

Reprinted from Ref.^[7].

Figure 2. (a) In the Kitaev QSL model, a spin is represented by an itinerant Majorana and three local Majorana operators, and a Z_2 gauge field appears in the system. (b) Based on the phase diagram of the Kitaev coupling strengths in the x, y, and z directions, there is a spin excitation energy gap in phase A, while there is no spin excitation energy gap in phase B. *Reprinted from Ref.^[7].*

2. Kitaev QSL 材料中 α - RuCl_3 分数化量子态的研究进展

2.1. α - RuCl_3 的基本性质

受限于各向异性伊辛型自旋耦合在实际材料中极难实现，Kitaev QSL 在提出后的很长一段时期内，都被视作仅存在于理论框架中的“玩具模型”。直至 2009 年，G. Jackeli 和 G. Khaliullin 通过理论工作首次指出，在同时具备晶体场效应、强自旋轨道耦合（Spin orbit coupling-SOC）以及强电子关联（库仑相互作用）的 Mott 绝缘体中，能够稳定地实现各向异性伊辛型自旋相互作用^[9]。基于这一理论预言，具有正八面体晶体结构且兼具强自旋轨道耦合的 Mott 绝缘体 A_2IrO_3 （ $\text{A}=\text{Na}, \text{Li}$ ）便成为首个被提出的 Kitaev 模型理想候选材料体系^[9-11]。然而后续实验研究发现，该体系存在诸多瓶颈：其一， A_2IrO_3 难以形成无晶格畸变的理想二维蜂窝结构，且体系中存在较强的非 Kitaev 杂散相互作用会显著压制本征 Kitaev 相互作用^[12,13]；其二，Ir 原子对中子具有极高的吸收截面，无法通过中子散射这一磁结构与磁激发的核心表征手段，精准标定其磁学本征性质，严重制约了实验层面的验证与探索^[14]。2014 年，实验研究发现 α - RuCl_3 能更好地满足 Kitaev 模型的核心物理条件，由此成为新一代 Kitaev QSL 候选材料并获得广泛关注^[15]。得

益于极弱的层间范德华相互作用与更低的磁有序转变温度（7 K）， α - RuCl_3 迅速成为该领域研究最系统、最深入的标杆型候选体系^[16]。

α - RuCl_3 具有典型的准二维层状蜂窝晶体结构，其磁性活性离子为 Ru^{3+} ，电子组态为 $4d^5$ ，处于 6 个 Cl 配位形成的正八面体晶体场环境中。在八面体晶体场作用下， Ru^{3+} 的 $4d$ 轨道发生能级劈裂，形成高能级的 e_g 轨道与低能级的 t_{2g} 轨道。进一步引入强自旋轨道耦合效应后， t_{2g} 轨道的被继续分裂为具有总有效角动量 $J_{\text{eff}}=1/2$ 的低自旋基态（两重简并）以及有效角动量 $J_{\text{eff}}=3/2$ 的高自旋态（四重简并）。在强电子-电子库仑相互作用下， $J_{\text{eff}}=1/2$ 的单电子能级进一步劈裂为上、下哈伯德（Hubbard）能带，电子被局域在晶格格点上，使体系最终呈现为 $S=1/2$ 有效自旋的 Mott 绝缘体（图 3），其本征体态中不存在可被电学探测的低能电荷激发。与此同时，体系中本征的各向异性 Kitaev 自旋交互作用（ K ）会诱导强烈的自旋阻挫，驱动体系向 QSL 态演化，并在 Mott 能隙内产生分数化的自旋量子激发。除主导的 Kitaev 相互作用外， α - RuCl_3 中还存在多种非 Kitaev 型自旋相互作用，包括最近邻海森堡相互作用（ J ）、非对角对称交换相互作用（ Γ 、 Γ' ）以及第三近邻海森堡相互作用（ J_3 ）等。其中，海森堡相互作用会驱动体系形成长程磁有序：随着温度降低，非 Kitaev 相互作用的贡献逐渐凸显，体系会进入反铁磁有序态，这也说明 α - RuCl_3 并非一个具有理想 QSL 基态的 Kitaev 体系。目前已有大量实验证实，该体系的反铁磁有序转变温度约为 7 K^[17-19]。

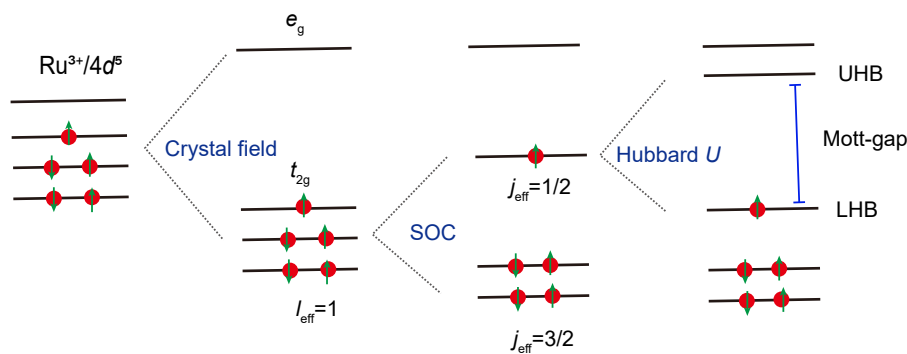


图 3. α - RuCl_3 的能带结构如图中所示。Ru 原子的 $4d^5$ 电子在正八面体晶体场作用下，其 d 轨道劈裂为高能的 e_g 空轨道与低能的 t_{2g} 轨道。五个电子以低自旋组态全部填充于 t_{2g} 轨道中。随后，在强自旋轨道耦合效应下， t_{2g} 轨道进一步劈裂，形成有效自旋为 $1/2$ 的半填充轨道。此时，相邻自旋间的相互作用方向被束缚于晶体成键方向，从而呈现出各向异性的伊辛型耦合。与此同时，电子间的库仑排斥作用导致该半填充轨道进一步分裂为上、下 Hubbard 能带。

Figure 3. The band structure of α - RuCl_3 is shown in the figure. Under the action of the octahedral crystal field, the $4d^5$ electrons of Ru atoms experience splitting of their d orbitals into high-energy e_g empty orbitals and low-energy t_{2g} orbitals. All five electrons are filled in the t_{2g} orbitals in a low-spin configuration. Subsequently, under the strong spin-orbit coupling effect, the t_{2g} orbitals further split to form half-filled orbitals with an effective spin of $1/2$. At this time, the interaction direction between adjacent spins is restricted to the crystal bonding direction, thus exhibiting anisotropic Ising-type coupling. Meanwhile, the Coulomb repulsion between electrons causes the half-filled orbitals to further split into upper and lower Hubbard bands.

针对 Kitaev 量子自旋液体的标杆候选材料 α - RuCl_3 ，其本征交换相互作用的精准标定，是连接理论模型预言与实验观测响应的核心纽带。早期一系列基于不

同理论模型与实验测量手段的研究,给出了该体系核心交换相互作用的参数取值范围^[20-27]: 铁磁型 Kitaev 相互作用强度 K 约为-5~-10 meV, 各向同性海森堡交换项 J 约为-0.5~-2 meV, 非对角对称交换项 Γ 约为 2~7 meV。基于这一能标范围,学界早期形成了普遍共识: 只有当温度降至 100 K 以下、热涨落被充分抑制后,体系中才能观测到 Kitaev 相互作用主导的本征物理。对应地,早期实验通过磁化率、比热等传统磁学与热力学表征手段,在 7~120 K 的中温区间观测到磁化率偏离居里-外斯定律的自旋短程关联行为,以及疑似 Kitaev 相特征的费米型激发信号^[28], 但该参数框架始终无法合理解释多组独立实验在 110 K 以上温区观测到的类 Kitaev 物理响应,形成了理论与实验间的核心矛盾。为破解这一关键难题, Li 等人在理论工作中^[29], 构建了多维度交叉验证的高精度多体数值计算体系: 采用指数张量重正化群 (XTRG) 精准计算体系热力学性质, 通过密度矩阵重正化群 (DMRG) 与变分蒙特卡洛 (VMC) 方法刻画基态物性, 结合精确对角化 (ED) 方法解析体系谱学特征; 通过对 α -RuCl₃ 的比热双峰结构、面内/面外各向异性磁化率、高场磁化曲线等多组独立的热力学与磁学实验数据进行全局约束拟合, 最终确定体系本征 Kitaev 相互作用强度为 $K = -25$ meV, 其绝对值较此前主流标定结果高出 2~5 倍, 直接揭示出该体系 Kitaev 相互作用的真实强度远高于早期学界的普遍认知。尤为关键的是, 基于该高 K 值模型预言的 100 T 强磁场下新型量子自旋液体相, 已在后续脉冲强磁场实验中得到直接验证^[30,29], 为该参数标定结果的可靠性提供了坚实的实验佐证。这一里程碑式的发现, 不仅从根本上解决了早期理论与实验的固有矛盾, 能够圆满解释多组独立实验在 110 K 乃至更高温度区间观测到的、由 Kitaev 关联主导的本征物理响应^[31,32]; 更重要的是, 更高的 Kitaev 相互作用能标大幅拓宽了 Kitaev 特征拓扑物理的可观测温度窗口,

极大降低了实验探测的技术门槛，为稳定观测量子自旋液体的分数化激发与非阿贝尔任意子提供了全新可能，也为后续设计合成更高能标的 Kitaev 材料体系指明了核心方向。

2.2. α -RuCl₃ 中的分数化激发

以 Majorana 自旋子为代表的分数化激发，是 Kitaev 模型最核心、最具有标志性的理论预言。自 Kitaev 模型提出以来，围绕这类分数化激发的实验验证、动力学表征与外场物性调控，始终是强关联量子材料领域的核心前沿方向。理论上，Kitaev 模型中量子激发随温度的演化行为如图 4a 所示：高温区热涨落会淬灭体系内的量子关联，使其进入常规顺磁相；中温区即可观测到由 Kitaev 相互作用诱导的巡游与局域 Majorana 自旋子激发；低温区量子自旋液体基态中的 Z_2 磁通近乎完全冻结，仅低能巡游 Majorana 自旋子可被热激发。但在 α -RuCl₃ 等实际候选材料中，海森堡交换项等非 Kitaev 相互作用的存在，会导致体系在极低温区进入长程反铁磁有序态，掩盖了本征量子自旋液体基态与分数化激发的本征特征。

上述激发特征的实验确认，不仅是 Kitaev QSL 存在的直接关键证据，更标志着人们对量子磁性材料的物性认知，从传统自旋波（磁振子）主导的朗道对称性破缺磁有序体系，正式跨入由长程量子纠缠与非平庸拓扑序共同支配的新奇量子物态研究新范式，对拓扑量子物理的基础理论探索与拓扑量子器件的应用研发均具有里程碑式的意义。作为当前 Kitaev 量子自旋液体最具代表性、研究最系统的候选体系， α -RuCl₃ 在过去十余年间，吸引了全球研究者利用多种互补的实验表征手段，对其分数化激发的存在性、动力学演化行为及外场调控规律展开了全维度的系统性研究，积累了大量关键的实验证据^[16]。其中，磁化率、磁比热容等宏观热力学测量，已清晰揭示了该体系中自旋关联随温度的演化规律：尤其在 140

K 以下、直至长程反铁磁序出现之前的宽温区内，被普遍认定为 Kitaev 相互作用主导的参数区间，自旋激发在此区间发生显著的分数量化；而磁比热容的定量分析，也进一步给出了巡游 Majorana 费米子存在的特征性热力学信号^[28]，与高 K 值模型的理论预言高度吻合。尽管如此，宏观热力学测量仅能给出体系整体的积分式物性响应，无法直接解析分数量化激发的微观动力学过程与拓扑起源，仍不足以完整揭示 α -RuCl₃ 的本征量子行为；与此同时，关于该体系中量子自旋液体相的精准稳定区间、分数量化激发的微观本质、非 Kitaev 相互作用的定量影响等核心问题，目前仍存在诸多悬而未决的关键争议，亟待更高精度的微观谱学表征与更系统的多体理论模拟实现突破。

非弹性中子散射（Inelastic Neutron Scattering, INS）恰好弥补了宏观热力学测量的核心局限，它可直接与自旋磁矩耦合、不受电荷效应干扰，能同时获取自旋激发的全动量-能量分辨信息，是研究 Kitaev 量子自旋液体低能分数量化激发的核心实验手段，在 α -RuCl₃ 分数量化激发的研究中发挥着不可替代的关键作用，为解析其本征量子物性提供了大量关键而详实的实验依据。其中，中子散射直接观测到的宽频连续磁激发谱，被公认为首个支持 α -RuCl₃ 存在自旋分数量化激发的重要实验证据：如图 4b 所示，在 Kitaev 相互作用主导的温区内可观测到显著的连续激发谱，其谱学特征与基于 Majorana 自旋子的自旋动力学理论计算高度吻合，并且该连续谱强度随着温度升高呈现出先增强后减弱的演化规律^[33]，在温度高于 125 K 后逐渐消失^[28]，与 α -RuCl₃ 中 Kitaev 关联随温度的演变行为高度一致，也与前文修正后的高 Kitaev 相互作用能标完全匹配，从谱学层面印证了更高本征 K 值的合理性；如图 4c、d 所示，该连续激发信号随温度、磁场等外场参数的演化行为^[28,33,19,34]，也与理论预言的 Majorana 自旋子动力学特征高度相符^[35]。

39]。上述结果为 α - RuCl_3 中分数化激发的存在提供了强有力的谱学证据，是该领域早期最具标志性的实验突破之一。

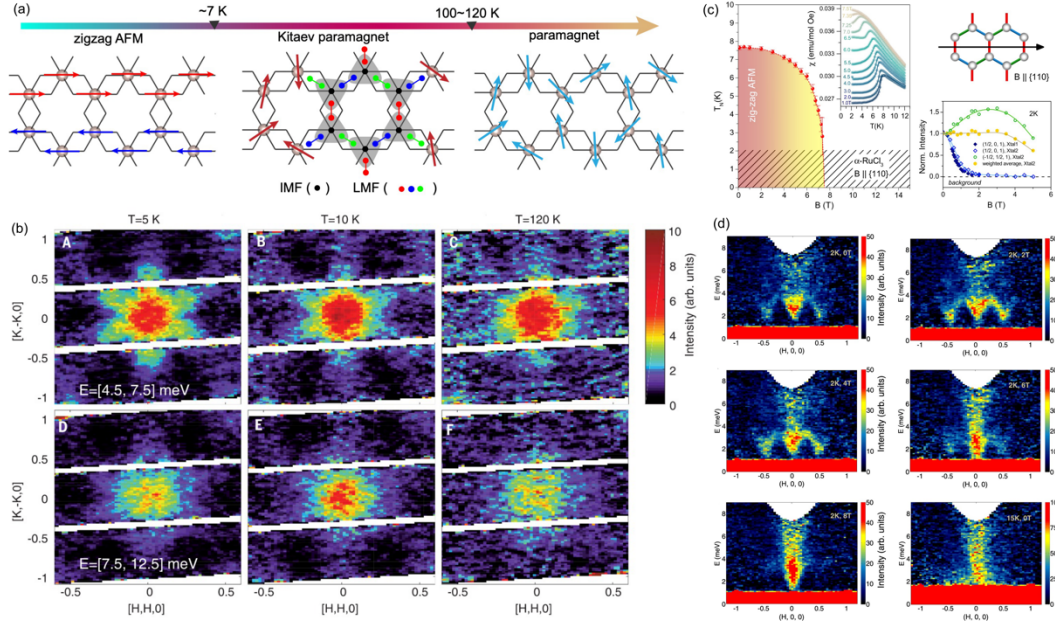


图 4. (a) α - RuCl_3 自旋动力学随温度演变的相图：在温度低于 7 K 时，体系进入具有锯齿型自旋序的反铁磁有序态；当温度高于约 110 K 时，体系进入顺磁关联相；在 7–110 K 的中温区间，体系表现为具有短程伊辛自旋耦合的 Kitaev 量子顺磁态。(b) 中子散射连续谱的动量与温度依赖关系，显示连续激发谱在中间温度下具有最强的比重，反铁磁温区出现磁序的激发谱，随着温度升高连续谱逐渐减弱。Reprinted from Ref.^[33] with permission.(c) 通过磁化率与中子衍射测量，给出了沿 α - RuCl_3 倒易[110]方向施加磁场时反铁磁有序的演化规律，证实磁场能够有效抑制磁有序；(d) 非弹性中子散射测量过程中连续激发谱随磁场与温度的演化验证其与 Kitaev 相下自旋阻挫的密切关联。Reprinted from Ref.^[34].

Figure 4. (a) Phase diagram of the evolution of spin dynamics in α - RuCl_3 with temperature: When the temperature is below 7 K, the system enters an antiferromagnetic ordered state with a zigzag spin order; when the temperature is above about 110 K, the system enters a paramagnetic correlation phase; in the intermediate -

temperature range of 7–110 K, the system exhibits a Kitaev quantum paramagnetic state with short - range Ising spin coupling. (b) The momentum and temperature dependence of the neutron scattering continuum spectrum shows that the continuum excitation spectrum has the strongest proportion at intermediate temperatures. The excitation spectrum of magnetic order appears in the antiferromagnetic temperature region, and the continuum spectrum gradually weakens as the temperature rises. *Reprinted from Ref.^[33] with permission.* (c) Through the measurements of magnetic susceptibility and neutron diffraction, the evolution law of antiferromagnetic order when a magnetic field is applied along the reciprocal [110] direction of α -RuCl₃ is presented, confirming that the magnetic field can effectively suppress the magnetic order; (d) The evolution of the continuum excitation spectrum with the magnetic field and temperature during inelastic neutron scattering measurements verifies its close association with spin frustration in the Kitaev phase. *Reprinted from Ref.^[34].*

除了具备动量-能量全分辨能力的非弹性中子散射，拉曼光谱作为另一类核心的磁激发谱学表征手段，凭借其高能量分辨率、对全动量空间积分磁激发的高灵敏度，以及原位外场与维度调控的便捷性，从激发的能量尺度、温度演化与外场响应维度，为 α -RuCl₃ 中自旋分数化激发的存在提供了与中子散射高度互补的关键实验证据。相关拉曼光谱研究在该体系中成功观测到宽温区演化的连续磁散射谱^[40,41,32,42]（如图 5c），其谱线线型、能量尺度与温度依赖行为，均与 Kitaev 模型中 Majorana 自旋子分数化激发的理论预言高度吻合，且该信号在 120 K 以上的温区仍可分辨，与前文修正后的高 Kitaev 相互作用能标完全匹配。尤为关键的是，该连续谱在体系进入低温长程反铁磁有序相后依然清晰可辨，直接证实：尽管非对角海森堡相互作用会驱使体系在极低温下进入磁有序态，但由 Kitaev

相互作用诱导的分数化激发本征信号并未被长程磁有序完全淬灭。而当施加强外磁场压制体系的自旋阻挫与量子关联，驱使体系进入完全自旋极化相后，该分数化连续谱信号随之完全消失（图 5f），进一步锁定了该磁激发信号与 Kitaev 自旋阻挫、分数化激发的内在关联。此外，针对少层乃至单层 α - RuCl_3 的拉曼光谱研究进一步表明，即使体系处于二维极限、伴随一定的晶格畸变，其本征 Kitaev 相互作用并未被削弱，反而呈现出显著的增强趋势^[43]，如图 5g-h 所示。这一结果不仅与前文“ α - RuCl_3 本征 Kitaev 相互作用强度远高于早期认知”的结论形成直接呼应，更为 Kitaev 量子自旋液体的物性调控提供了维度调控这一全新维度，也为在低维体系中探索更高能标、更稳定的 Kitaev 量子自旋液体态开辟了重要路径。

与此同时，核磁共振（Nuclear Magnetic Resonance, NMR）实验凭借其原子级的局域探测能力，从局域自旋动力学、微观磁响应与热力学演化的角度，为 α - RuCl_3 中分数化激发的存在提供了关键的局域尺度实验证据。相关 NMR 研究在体系中观测到了与 Kitaev 模型理论预言高度吻合的自旋激发能隙，而这一能隙被普遍认定为自旋分数化后有能隙 Z_2 磁通任意子激发的核心特征之一^[44-47]；同时，自旋-晶格弛豫率的反常温度演化行为，也进一步印证了体系中不存在常规磁有序的局域自旋冻结，与分数化激发的动力学特征高度匹配。这些局域尺度的实验结果，与宏观热力学、中子散射、拉曼光谱的实验结论形成了多维度交叉验

证,进一步深化了学界对 α -RuCl₃内部复杂量子物态与全温区相图的系统性认知。

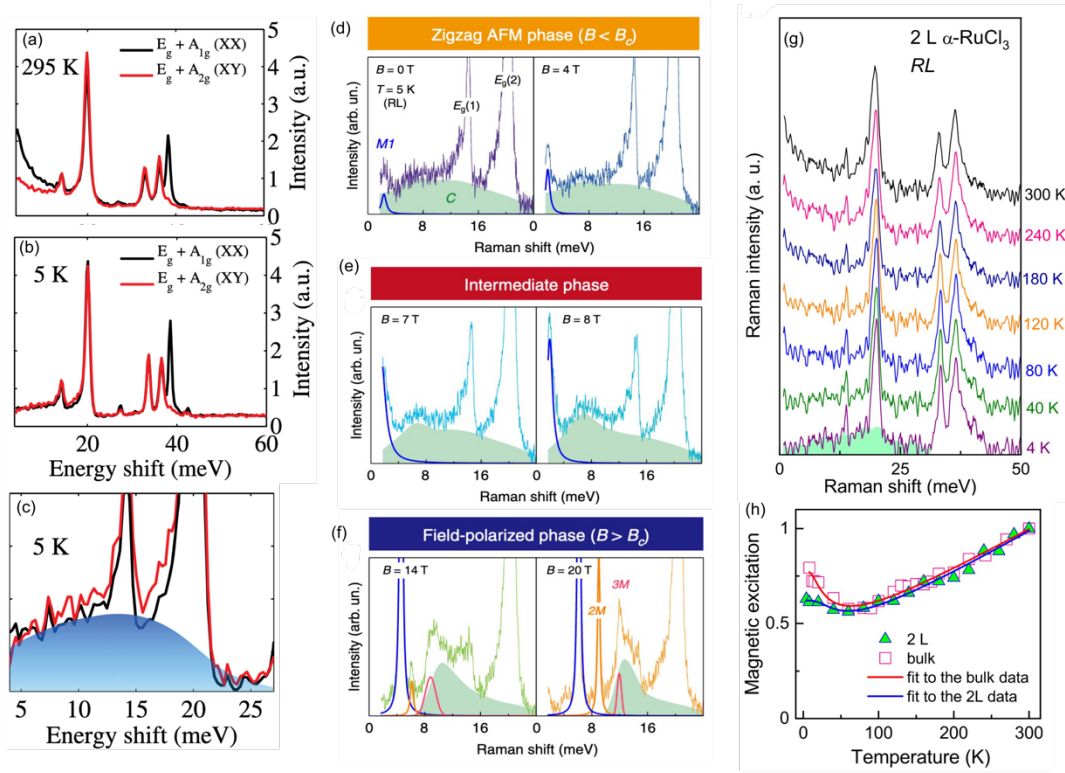


图 5. α -RuCl₃拉曼光谱在两个通道中可观测到一系列分立声子模, E_g 通道呈现延伸至 20–25 meV 的宽连续谱, A_{1g} 通道则存在准弹性散射。室温 295 K (a) 与低温 5 K (b) 的拉曼光谱, 其中符合分数化激发的低能连续谱只在低温 (5 K) 下显现 (c)。Reprinted from Ref.^[40] with permission. (d–f) 低温下拉曼光谱随磁场的演化特征: 低场下 (d) 可同时观测到由反铁磁序产生的磁性激发峰 (M1) 与来自分数化激发的低能连续谱; 中等磁场下 (e) 反铁磁序被抑制, M1 峰消失但连续激发谱仍可分辨, 对应磁场诱导的 Kitaev 自旋液体相; 高磁场下 (f) 自旋极化自旋液体相消失, 体系转变为自旋极化的磁性激发谱。Reprinted from Ref.^[42]. (g–h) 二维极限下 (2L- α -RuCl₃) 拉曼光谱随温度的演化, 其中 (h) 的结果证实 2L- α -RuCl₃ 中的低能连续谱相比体态更明显。Reprinted from Ref.^[43].

Figure 5. Raman spectra of α -RuCl₃ exhibit a series of discrete phonon modes in two channels. The E_g channel shows a broad continuum extending to 20–25 meV, while the A_{1g} channel displays quasielastic scattering. Raman spectra measured at room temperature (295 K, panel a) and low temperature (5 K, panel b) reveal that the low-energy continuum characteristic of fractionalized excitations only appears at 5 K (panel c). *Reprinted from Ref.^[40] with permission.* Panels (d)–(f) show the evolution of low-temperature Raman spectra with magnetic field. At low fields (d), both a magnetic excitation peak (M1) from antiferromagnetic order and a low-energy continuum from fractionalized excitations are observed. At intermediate fields (e), the antiferromagnetic order is suppressed, the M1 peak vanishes, yet the continuum remains distinguishable, corresponding to the field-induced Kitaev QSL phase. At high fields (f), the spin-polarized spin liquid phase disappears and the system transitions to a spin-polarized magnetic excitation spectrum. *Reprinted from Ref.^[42].* Panels (g) and (h) show the temperature evolution of Raman spectra in the two-dimensional limit (2L- α -RuCl₃). The results in (h) confirm that the low-energy continuum in 2L- α -RuCl₃ is more pronounced than in the bulk. *Reprinted from Ref.^[43].*

除了上述谱学与热力学表征提供的静态与动力学证据，热导率（纵向热导率 κ ）及热霍尔效应（热霍尔导率 κ_{xy} ）的测量，作为唯一可直接探测低能分数化激发相干输运行行为的宏观实验手段，能够反映声子、磁振子、手征 Majorana 费米子等低能载流子的散射与输运特性，是判定体系是否存在非平庸拓扑量子态、验证手征 Majorana 自旋子存在的重要实验判据，可能为 α -RuCl₃ 的 Kitaev 物理研究提供了输运维度的关键支撑。围绕 α -RuCl₃ 开展的热输运研究已取得一系列突破，构建了从低场到高场、从低温到中温的全维度输运相图。2017 年，Leahy 等

人通过面内热导率与磁转矩的联合测量，明确 α - RuCl_3 在 7 T 临界磁场下发生场致相变—长程反铁磁有序被完全抑制，体系进入候选量子自旋液体相；其低温热导率随温度呈现的线性依赖行为，揭示了体系中可能存在无能隙的类 Majorana 自旋子元激发，为近 Kitaev 型量子自旋液体相的存在提供了首个输运维度的实验证据^[48]。同期，Hirobe 等人发现， α - RuCl_3 热导率在 100 K 附近出现的特征反常峰，可归因于 Kitaev 相互作用主导的巡游自旋激发的输运贡献，并首次证实此类分数化激发具有长程相干输运特性^[49]。在此基础上，后续系列热输运实验进一步系统揭示了 α - RuCl_3 全参数空间内的新颖输运行为，包括 7.5 T 以上高场下声子与分数化磁激发之间的强耦合散射效应、场致自旋能隙打开过程中伴随的热导率显著反常提升，以及面内纵向热导率 κ_{xx} 的量子振荡行为等^[50–52] 逐步完善了体系低能激发输运特性与磁场、温度调控的定量对应关系，为锁定 Kitaev 分数化激发的输运贡献提供了更丰富的实验约束。理论研究方面，Nasu 等人于 2017 年借助量子蒙特卡洛（QMC）模拟，首次系统解析了 Kitaev 模型的本征热输运特性，明确体系纵向热导率与热霍尔导率的核心特征由巡游 Majorana 自旋子与 Z_2 磁通激发的协同输运共同决定，并预言低温下体系的热霍尔导率系数将趋近于拓扑量子化极限^[53]。这一理论工作为实验上通过热霍尔效应探测手征 Majorana 自旋子、验证非平庸拓扑序提供了直接的理论指引。

受理论预言驱动，日本的研究团队率先开展了 α - RuCl_3 的热霍尔效应系统研究，在磁场抑制长程反铁磁有序的相区间观测到了显著的正热霍尔电导 κ_{xy} （如图 6a 所示）。该工作通过系统的对照实验与定量分析，排除了声子斜散射、常规磁振子、Dzyaloshinsky-Moriya 相互作用诱导的拓扑磁振子等所有常规热霍尔信号起源的可能性，实验结果与纯 Kitaev 模型中巡游 Majorana 费米子激发的理

论预测、量子蒙特卡洛模拟结果高度契合，首次在输运维度为 α -RuCl₃ 中手征 Majorana 费米子的存在提供了实验证据^[54]。在此基础上，团队通过极低温、高精度热输运测量方案的持续优化，进一步开展了极低温区间($T < 4.2$ K)的热霍尔效应本征行为研究。结果表明，当外磁场完全抑制低温下的长程反铁磁序后，可在温度低于 6 K、磁场强度 10~11 T 的相窗口内，观测到接近半整数量子化的热霍尔电导平台(图 6c)^[55,56]。该实验结果与理论上关于量子化热导的预言相一致，被视作手征 Majorana 边缘态存在的核心实验证据。基于热输运的实验结果，研究人员绘制出了清晰的热输运下 α -RuCl₃ 的相图^[55,56]，如图 6b 所示，紫色区域为量子化热导的出现区间，其可实现量子化输运的最高温度接近 6 K。若该信号可最终确认为来源于手征 Majorana 边缘态，则基于该体系构筑拓扑量子比特，将相较其他非阿贝尔粒子体系展现出极为显著的温度优势。在此之后，多个研究组围绕 α -RuCl₃ 的热输运行为开展了系统研究，深入解析了其量子化热导随磁场大小、取向等外场参数的演化规律。实验发现，该体系的量子化热输运行为可以由 Majorana 边缘态的拓扑本征性质决定；结合理论分析进一步明确， α -RuCl₃ 中 Majorana 边缘态的拓扑属性，直接由磁场调控的拓扑陈数决定——仅当磁场沿特定晶向 ($B//a$) 施加时，体系中的 Majorana 自旋子才能打开能隙，进而实现陈数为 1 的手征 Majorana 边缘态^[56,57]，相关演化规律如图 6d-f 所示。与此同时，系列研究亦发现，热霍尔测量中观测到的热导量子化行为严格依赖于样品的结晶质量；尤以层间堆叠位错的影响最为显著，该类结构缺陷会严重破坏体系的量子化热输运特性。而 α -RuCl₃ 作为范德华层状材料，其本征结构特性使其在晶体生长与样品制备过程中极易产生此类层间堆叠位错。因此，如何有效抑制并消除层间堆叠位错，已成为当前该体系量子化热输运研究中的核心关键挑战^[56-60]。总之，材料

方面，提升样品质量、开发多元化的单晶生长策略，仍是当前该领域重点攻关的核心研究方向之一。

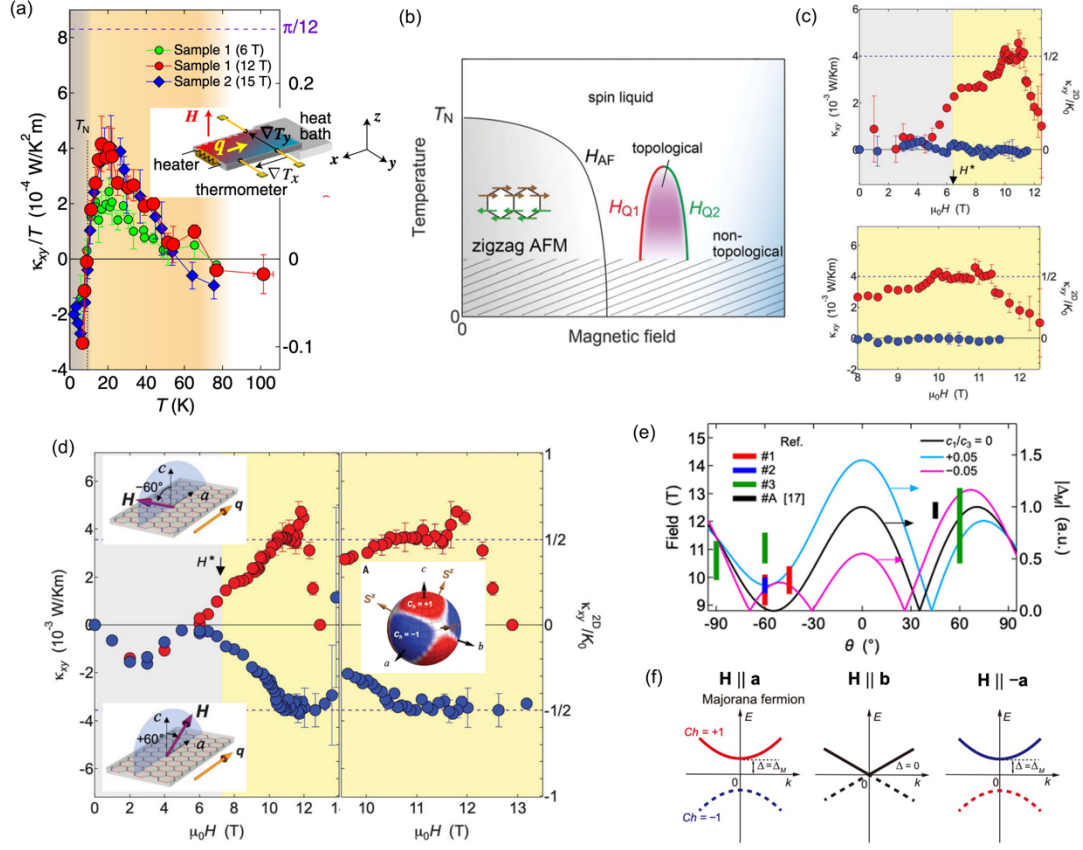


图 6. (a)不同磁场下体态 α -RuCl₃ 的 κ_{xy}/T 随温度的变化，7-80K 之间存在显著正向霍尔热导；右侧标尺为 $(\kappa_{xy}^{2D}/T)/(k_B^2/\hbar)$ ，其中 $\kappa_{xy}^{2D} = \kappa_{xy}d$ ($d=5.72$ Å 为层间距)，紫色虚线为量子化热霍尔效应理论值： $(\kappa_{xy}^{2D}/T)/(k_B^2/\hbar) = \pi/12$ 。Reprinted from Ref.^[54] with permission. (b) α -RuCl₃在平行于 a 轴施加磁场下的示意性 H-T 相图。灰色阴影区域表示锯齿型反铁磁有序区。粉色区域为观测到半整数量子化热霍尔效应的区间； κ_{xy} 在 H_{Q1} 与 H_{Q2} 之间表现出量子化平台。蓝色阴影区域表示 κ_{xy} 消失的区间。影线区域为热霍尔效应无法测量的区间；(c) 4.8 K 时，磁场沿面内 $-a$ 轴（红圈）、 b 轴（蓝圈）的 κ_{xy} 变化，灰色、黄色阴影分别为反铁磁态、Kitaev 顺磁态，10-11T 处可见清晰半整数量子化热导信号；(d)样品倾斜磁场下

的热导行为：左图为 4.3 K，ac 平面内与 c 轴成 $\theta = -60^\circ$ （红圈）和 60° （蓝圈）时， κ_{xy} 随磁场的变化（热流沿 a 轴， $H^*=7.0$ T 为反铁磁转变磁场；右图为高场自旋液体态数据；插图为空间磁场下 α -RuCl₃ 拓扑陈数变化。Reprinted from Ref.^[56] with permission. (e) 彩色柱状条对应不同样品观测到半整数量子化热霍尔电导平台的磁场区间（左轴）；黑色实线为纯 Kitaev 模型，浅蓝、粉色实线为不同非 Kitaev 相互作用下，Majorana 能隙 $|\Delta M|$ 随磁场角度的变化。Reprinted from Ref.^[57] with permission. (f) Kitaev QSL 中巡游 Majorana 自旋子能带色散示意图：红、蓝曲线对应拓扑陈数 +1、-1； $E < 0$ 部分为冗余（虚线），其陈数决定拓扑性质；磁场平行 a 轴/-a 轴时存在能隙 ΔM ，平行 b 轴时能隙闭合，旋转磁场角度会在 b 轴方向出现零能拓扑能带交点。Reprinted from Ref.^[59] with permission.

Figure 6. (a) Temperature dependence of κ_{xy}/T for bulk α -RuCl₃ at various magnetic fields. A pronounced positive thermal Hall conductivity is observed between 7 and 80 K. The right-hand scale corresponds to $(\kappa_{xy}^{2D}/T)/(k_B^2/\hbar)$, where $\kappa_{xy}^{2D} = \kappa_{xy}d$ ($d = 5.72$ Å is the interlayer spacing). The purple dashed line denotes the theoretical value for the quantized thermal Hall effect: $(\kappa_{xy}^{2D}/T)/(k_B^2/\hbar) = \pi/12$. Reprinted from Ref.^[54] with permission. (b) Schematic H–T phase diagram of α -RuCl₃ with a magnetic field applied parallel to the *a* axis. The gray shaded area denotes the zigzag antiferromagnetic ordered phase. The pink region indicates the regime where the half-integer quantized thermal Hall effect is observed; κ_{xy} exhibits a quantized plateau between H_{Q1} and H_{Q2} . The blue shaded area represents the regime where κ_{xy} vanishes. The hatched region denotes the field–temperature window where the thermal Hall effect could not be measured. (c) κ_{xy} at 4.8 K vs. magnetic field along in-plane *-a* (red circles) and *b* (blue circles) axes. Gray (antiferromagnetic state) and yellow (Kitaev paramagnetic state) shaded regions; clear half-integer quantized thermal conductivity

appears at ~ 10 – 11 T. (d) Thermal conductivity under tilted magnetic fields (4.3 K, heat current along a axis): left, κ_{xy} vs. field at $\theta = -60^\circ$ (red) and 60° (blue) in ac plane ($H^* = 7.0$ T is antiferromagnetic transition field); right, high-field spin liquid data; inset, topological Chern number variation. *Reprinted from Ref.^[56] with permission* (e) Color bars: magnetic field ranges of half-integer quantized thermal Hall plateau for different samples (left axis). Solid lines: pure Kitaev model (black) and Majorana gap $|\Delta M|$ vs. field angle under non-Kitaev interactions (light blue, pink). *Reprinted from Ref.^[57] with permission*. (f) Schematic band dispersion of itinerant Majorana spinons in Kitaev QSL: red/blue curves (Chern numbers $+1/-1$); $E < 0$ (dashed, redundant). ΔM opens for $H \parallel a/-a$, closes for $H \parallel b$; field rotation induces zero-energy topological band crossing near b axis. *Reprinted from Ref.^[59] with permission*.

2.3. α -RuCl₃中 Majorana 费米子、边缘态的争议

尽管非弹性中子散射、拉曼光谱、核磁共振及热输运等多种互补实验手段已从谱学、热力学与输运等多个维度为 α -RuCl₃中自旋分数化激发的存在提供了交叉佐证，但此前被归因于 Majorana 自旋子分数化激发的核心实验特征——包括中子散射观测到的宽频连续磁激发谱、热输运测量中线性温度依赖的热导率以及半整数量子化热霍尔平台等——仍存在较大争议。其中，围绕热输运实验的讨论尤为激烈，多个研究小组已给出了与 Majorana 图像相左的实验结论。

Yu 等人^[61]发现，在高场相 (8.5 T) 中将热导率外推至绝对零度时， κ_0/T 的值几乎为零，意味着不存在无能隙的磁激发，即没有可以传导热量的巡游费米子激发。这一结果与 Leahy 等人^[48]提出的近邻 Kitaev 激发的解释相矛盾，但支持 Hentrich 等人^[51]的观点：高场下的热导率增强主要源于声子，磁激发不直接参与热输运，仅起到散射作用。Lefrançois 等人^[62,63]的研究亦对高场下存在 QSL 及

Majorana 费米子的观点提出了强烈质疑，主张热输运主要由声子主导，而非分数化激发；任何关于 Majorana 费米子的结论都必须先扣除巨大的声子背景。Jin 等人^[64]的最新研究也表明，声子本身在磁场下即可产生巨大的热霍尔效应，且声子热霍尔效应是晶体的普遍现象，改变了热霍尔效应领域的基本图景。Czajka 等人^[65]的研究则指出， α -RuCl₃ 的面内热霍尔效应可能来源于拓扑磁子（玻色子），而非 Majorana 费米子，并直接提取出 Chern 数，从拓扑磁子角度推翻了半量子化热霍尔效应作为 Majorana 费米子证据的结论。尤为关键的是，Shragai 等人近期发表于《Nature》的工作中，通过超声声法拉第效应测量，在 α -RuCl₃ 中直接观测到了由声子贝里曲率诱导的非耗散性声子霍尔粘度，从实验层面严格证实了声子本身即可产生本征热霍尔效应，且其贡献可覆盖体系中绝大部分乃至全部实测的热霍尔信号。这一结果直接挑战了将该体系热霍尔效应与半整数量化平台完全归因于马约拉纳边缘态的认知^[66]。值得注意的是，上述挑战也并非完全否定 Majorana 边缘态的解释，因为声子与 Majorana 激发仍然可能共存，从而导致实验上观测到的结果；然而，这些实验进展要求我们重新审视信号的主要来源。

2.4. 小结

上述系列研究进展，一方面使得 α -RuCl₃ 中相关量子物态的本质归属、自旋分数化激发的本征性问题仍悬而未决；另一方面也证实，块体 α -RuCl₃ 的宏观物性测量结果表现出极强的样品依赖性，层间堆叠位错（堆垛层错）、残余层间耦合、晶格缺陷、化学杂质等非本征因素，均会显著调制甚至完全遮蔽 Majorana 激发的本征行为与拓扑量子态的稳定性^[57,67,68]，导致不同研究组的实验结果难以形成统一的交叉验证。尽管理论计算已在理想模型框架下揭示了分数化自旋激发与常规玻色型磁激发的微观谱学与输运差异，但受限于电中性自旋激发传统探测手

段的局域性与分辨率瓶颈，目前仍未能建立具有排他性的、可直接区分两类激发的实验判定依据，使得该领域长期呈现出“实验现象日益丰富，物理本源仍未厘清”的僵持局面。

综合现有 α - RuCl_3 的研究进展与核心争议，若要厘清量子化热导的物理起源、揭示磁激发的本征属性，并最终获得 Majorana 自旋子分数化激发的确凿实验证据，核心研究路径可归纳为以下三个互为支撑的方向：其一，发展兼具高能量分辨率、宽温区与强磁场覆盖能力、且可实现多物理量协同表征的精密实验技术，突破电中性自旋激发的传统探测瓶颈，建立可区分分数化激发的排他性判据；其二，进一步优化体相 α - RuCl_3 单晶的合成与制备工艺，精准调控杂质浓度、堆垛层错、晶格畸变等非本征因素，最大限度削弱其对量子态本征信号的遮蔽与干扰；其三，发展异质衬底上高质量 α - RuCl_3 二维薄膜的可控制备技术，借助维度效应与界面工程实现对体系的灵活调控。通过磁场、压力等多外场协同调制，精细调控体系的自旋相互作用与电子结构，有效抑制非 Kitaev 相互作用，使其物性更趋近于理想 Kitaev 模型的理论预言，从而为核心物理争议的最终解决提供更为纯净的实验体系与更直接的观测依据。

近年来，伴随着理论研究的不断纵深推进，电学测量技术在探索 Kitaev 量子自旋液体核心科学问题中的关键价值日益凸显。该技术不仅有望突破传统热学与光谱手段在表征维度上的局限性，更可作为一种全新的研究范式，为厘清体系中分数化激发的物理本质、破解当前领域的核心争议提供强有力的实验抓手^[69-78]。尤为重要的是，这类电学测量技术不仅为精准探测 Majorana 自旋子的本征特征开辟了全新实验路径，更有望为拓扑量子比特的物理构筑、相干操控及性能优化奠定关键的实验与理论基础^[79-81]。其中，扫描隧道显微谱（STS）/点接触隧

穿谱等电子隧穿谱学技术，凭借其对低能准粒子激发的超高灵敏度、 μeV 级原子级能量分辨率、纳米尺度的局域空间分辨能力，以及原位外场调控的良好兼容性，在 Kitaev QSL 候选体系的本征物性研究中展现出极具潜力的应用前景。该技术可通过精准捕捉 Majorana 自旋子本征态特有的量子隧穿信号特征，为 $\alpha\text{-RuCl}_3$ 等核心体系中 Majorana 分数化激发的存在提供具有排他性的全新实验证据，进而为破解当前领域的核心认知分歧、验证非平庸拓扑序提供关键的实验判据。

3. Kitaev 自旋液体的 Mott 物性及 Majorana 自旋子隧穿谱学研究

3.1. 以隧穿电子为探针的 Kitaev 体系量子物态研究

作为破解 Kitaev 量子自旋液体核心认知分歧的关键实验路径，以隧穿电子为探针的量子物态研究，已在理论层面构建起完善的体系化研究框架。理论工作不仅明确了 Kitaev 量子自旋液体中巡游 Majorana 自旋子对应的微分电导峰、自旋极化依赖的隧穿选择定则、拓扑保护的抗微扰鲁棒性等核心本征隧穿特征，还针对点接触隧穿、范德华异质结平面隧穿器件、STS 局域隧穿等多种主流实验构型，完成了系统的理论模拟、特征预言与可行性方案设计，为实验探测提供了清晰、可落地的理论指引。然而，该方向的实验探索仍面临多重关键瓶颈：在 $\alpha\text{-RuCl}_3$ 等核心候选体系中，体材料样品电荷能隙过大，高绝缘性难以构筑隧穿回路；晶格缺陷、堆垛无序、杂质残留等非本征因素难以完全根除，极易掩盖分数化激发的本征低能隧穿信号；与此同时，强磁场、极低温极端条件下的原子级高分辨率隧穿测量技术仍存在关键短板，难以精准捕捉微弱的拓扑非平庸隧穿响应。正因如此，目前实验层面尚未完成对理论预言的系统性验证与定量匹配，理论研究在本征特征预言精度、多场景调控方案拓展等方面显著领先于实验进程，二者

之间形成了明显的发展鸿沟，这也成为当前制约 Kitaev QSL 本征物性验证、排他性实验判据建立与拓扑应用突破的核心瓶颈之一。

尽管针对 Kitaev QSL 体系的本征电子隧穿实验研究起步相对较晚，整体进程仍显著滞后于理论框架的发展，与热输运、中子散射等成熟表征手段相比仍存在较大差距，但电子隧穿技术作为精准表征低维量子磁性材料本征磁基态、微观自旋激发与拓扑物性的核心实验手段，已在同属范德华层状磁性体系的相关研究中取得了一系列里程碑式的关键进展，为 Kitaev QSL 体系的隧穿探测奠定了坚实的基础。2018 年，麻省理工学院 P. Jarillo-Herrero 团队利用电子隧穿表征技术，系统揭示了少层 CrI_3 二维范德华磁性绝缘体的磁基态演化、层间磁耦合机制、隧穿巨磁阻效应及集体磁振子激发行为。该工作不仅填补了二维范德华磁性材料器件化电学表征的关键技术空白，更证实了隧穿谱对低维范德华磁性体系自旋激发的超高探测灵敏度，为后续在二维极限下研究 $\alpha\text{-RuCl}_3$ 等 Kitaev 体系的本征自旋行为与分数化激发，提供了可直接迁移的技术路径与研究思路^[82]。该团队通过构建图 7 a 所示的二维电子隧穿器件，实现了低温强磁场下隧穿微分电导的高精度原位测量，发现隧穿电导对 CrI_3 势垒的磁化状态具有超高灵敏度响应，直接证实电子隧穿可作为二维范德华磁体磁性特征的高效电学探测手段。与此同时，该工作借助非弹性隧穿谱（Inelastic Electron Tunneling Spectroscopy-IETS），直接观测到了少层 CrI_3 中的集体磁振子激发(如图 7b-e)，实现了二维范德华磁性体系中集体磁激发的隧穿谱直接探测。同年，D. Ghazaryan 等人以石墨烯/ CrBr_3 /石墨烯范德华异质结为研究对象，系统解析了二维范德华铁磁体系中的磁振子辅助隧穿机制，明确了低温铁磁相下隧穿电流的主导通道为磁振子发射过程，而在居里温度以上的顺磁相则转变为自旋无序散射主导的隧穿机制。通过面内/面外磁场及

温度依赖的微分电导测试，该团队观测到磁振子特征峰随磁场呈线性蓝移，并发现石墨烯电极因邻近效应出现磁滞回线与各向异性磁电阻，证明 CrBr_3 铁磁势垒可实现高效自旋注入，为二维自旋电子学器件提供了新机制与实验依据^[83]。尤为关键的是，尽管该工作基于微纳尺度的平面隧穿器件构型，但其揭示的磁激发辅助隧穿核心物理机制与 STM/STS 的局域隧穿过程完全同源，为后续包括 Kitaev QSL 在内的新型范德华量子磁性体系的 STM/STS 高分辨局域探测，奠定了关键的方法学基础与实验参考。

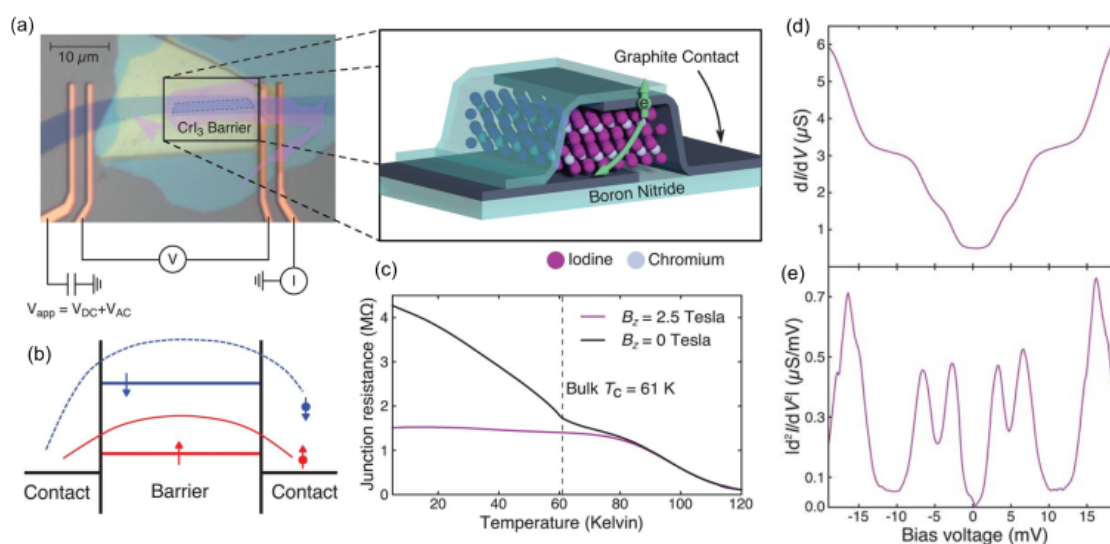


图 7. (a) 四层 CrI_3 隧道结器件的光学显微照片。虚线标示出隧道结区域，石墨接触电极通过金/(Au/Cr)引线以四探针构型实现电学连接。电子在由磁性 CrI_3 隧穿势垒隔开的两层石墨之间发生隧穿，整个异质结堆叠结构由六方氮化硼包覆；(b) 金属/铁磁绝缘体/金属隧道结的能带结构示意图。势垒区的红线与蓝线分别对应自旋向上和自旋向下的隧穿势垒。自旋向上电子对应的势垒更低，由此产生自旋极化隧穿效应，使铁磁势垒对应的器件电阻降低；(c) 隧穿器件在施加外磁场（紫线）与无外磁场（黑线）条件下冷却时，零偏压结电阻随温度的变化关系。两条曲线在体材料居里温度（61 K）附近开始出现偏离，证明了 CrI_3 势垒中磁有序的

形成，以及自旋极化隧穿效应的存在；（d）非弹性隧穿谱，上图：双层 CrI_3 势垒器件在零外磁场下，微分电导随直流偏置电压的变化关系。下图：由上图数据经数值微分得到的 d^2I/dV^2 绝对值随直流偏置电压的变化关系。根据非弹性隧穿谱理论， d^2I/dV^2 曲线中的峰位对应势垒或电极材料的声子或磁振子激发。

Reprinted from Ref.^[82] with permission.

Figure 7. (a) Optical micrograph of a four-layer CrI_3 tunneling device. The dashed line outlines the tunneling junction region. Graphite contact electrodes are electrically connected in a four-probe configuration *via* Au/Cr leads. Electrons tunnel between two graphite layers separated by the magnetic CrI_3 tunneling barrier, with the entire heterostructure stack encapsulated by hBN; (b) Schematic band structure of a metal/ferromagnetic insulator/metal (MFM) tunnel junction. The red and blue lines in the barrier region represent the tunneling barriers for spin-up and spin-down electrons, respectively. Electrons with spin-up encounter a lower energy barrier, giving rise to a spin-polarized tunneling effect and thus reducing the device resistance associated with the ferromagnetic barrier; (c) Temperature dependence of the zero-bias junction resistance as the tunneling device is cooled with (purple line) and without (black line) an external magnetic field. The two curves start to deviate near the bulk Curie temperature (61 K), confirming the formation of magnetic order in the CrI_3 barrier and the existence of spin-polarized tunneling; (d) Inelastic tunneling spectroscopy. Top panel: Differential conductance (dI/dV) as a function of DC bias voltage for a bilayer CrI_3 barrier device under zero external magnetic field. Bottom panel: Absolute value of the numerically differentiated second derivative of the current d^2I/dV^2 as a function of DC bias voltage, derived from the data in the top panel. According to inelastic tunneling spectroscopy theory, the peak positions in the d^2I/dV^2 curves correspond to phonon or

magnon excitations in the barrier or electrode materials. *Reprinted from Ref.^[82] with permission.*

如前文所述, 尽管非弹性中子散射、热霍尔效应测量等块体表征手段, 已在 α - RuCl_3 中观测到与 Kitaev QSL 态相符的部分特征信号, 但这类宏观积分式表征手段存在两大无法突破的固有局限: 其一, 其获取的是体系全动量空间的积分响应, 无法有效区分分数化自旋激发与常规磁振子、声子等玻色型本征激发的贡献, 始终无法为 QSL 相的存在提供具有排他性判据, 这也是当前领域核心争议的根源; 其二, 这类手段对原子级薄层的二维范德华异质结体系探测灵敏度极低, 难以适配少层/单层 α - RuCl_3 的本征物性表征需求, 无法支撑维度调控下 Kitaev 物理的系统研究。在此背景下, 二维电子隧穿谱技术凭借其天然适配的原子级界面兼容性、 μeV 级超高能量分辨率、纳米尺度非破坏性局域探测能力, 以及可原位耦合多外场调控的优势, 成为薄层 α - RuCl_3 中 QSL 本征分数化激发表征的极具潜力的核心技术路径。而如何通过该技术提取分数化激发的确定性谱学指纹, 实现 Majorana 自旋子、拓扑 Majorana 束缚态与常规磁激发、晶格声子激发的精准有效区分, 进而建立 Kitaev QSL 相的电学判据, 成为该方向亟待突破的核心理论与实验技术瓶颈。围绕上述关键科学问题, 理论领域已开展了广泛的前瞻性研究与系统的多体模拟计算, 为实验探索提供了清晰的理论指引与可落地的方案设计。Matteo Carrega 等人率先建立了石墨烯/ α - RuCl_3 /石墨烯垂直范德华异质结的自旋依赖隧穿理论框架, 为二维-二维 (2D-to-2D) 隧穿谱的实验表征提供了系统的理论支撑与实验指引^[84]。该工作从异质结体系的总哈密顿量出发, 将其拆解为无隧穿耦合的子系统本征哈密顿量与自旋隧穿耦合项两部分, 核心形式为:

$$H = H_0 + H_{tun}$$

其中 $H_0 = H_t + H_b + H_m$, H_t 与 H_b 分别对应异质结顶、底石墨电极的电子哈密顿量, H_m 为中间 $\alpha\text{-RuCl}_3$ 磁性绝缘层的有效自旋哈密顿量; H_{tun} 为描述电极与磁性层之间自旋依赖隧穿过程的耦合哈密顿量, 是关联电极中电子输运行为与磁性层自旋动力学特性的核心桥梁。该工作通过构建自旋依赖的隧穿耦合项, 将电子的隧穿过程与磁性层的自旋算符直接绑定, 最终推导出非弹性电子隧穿谱与动态自旋结构因子的核心关联式:

$$\frac{d^2 I}{dV^2} \propto \Im m \bar{Q}(q, \omega)$$

其中 $\Im m \bar{Q}(q, \omega)$ 为动量平均后的自旋结构因子, 其物理本质是定量描述磁性层中激发一个动量为 q 、能量为 ω 的自旋准粒子的态密度与激发概率。基于这一自旋依赖的隧穿耦合机制, 电子在上下石墨烯电极间的隧穿跃迁必然伴随自旋翻转过程, 同时驱动 $\alpha\text{-RuCl}_3$ 中包括 Majorana 自旋子在内的自旋集体激发的产生与湮灭, 这正是隧穿输运信号能够精准映射磁性层自旋激发本征特性的核心物理根源。该工作通过二阶微扰论与多体线性响应理论, 严格推导了非弹性隧穿电流与 $\alpha\text{-RuCl}_3$ 动态自旋结构因子的定量关联, 最终实现了隧穿谱信号对量子自旋液体分数化激发的直接映射, 为该体系的后续实验研究奠定了核心理论基础^[84]。与此同时, Valerio Peri 等人^[85]基于同构型的石墨烯/ $\alpha\text{-RuCl}_3$ /石墨烯垂直隧穿结器件模型, 提出了基于量子扭转显微镜 (Quantum twisting microscope-QTM)^[86]的二维 Kitaev QSL 全新探测方案。其核心创新在于, 通过调控石墨烯电极间的相对扭转角实现隧穿电子的动量精准筛选与调控, 建立了非弹性电子隧穿谱与自旋液体动态自旋结构因子的直接定量关联, 实现了对二维自旋液体分数化激发的动量-能量双分辨探测。Elio J. König 等人则进一步针对 $\alpha\text{-RuCl}_3$ 体系^[76], 系统构建了覆

盖二维平面垂直隧穿结、一维 Pincher 栅侧向隧穿结、零维 STM 点接触结三类实验可行的金属-QSL-金属 (M-QSL-M) 隧穿结几何构型 (如图 8a-c 所示)。该工作同样以自旋依赖的隧穿耦合项为核心, 基于非弹性隧穿过程中电子自旋翻转、激发 Majorana 自旋子的物理机制, 给出了不同几何构型下分数化激发谱学特征的提取方案与实验判定标准 (如图 8d-f), 为后续基于不同隧穿结构的实验工作提供了理论支持。该研究同时证实, 零维 STM 点接触构型不仅无需制备复杂的平面微纳器件结构, 还兼具原子级空间分辨能力, 可直接用于探究 Kitaev 体系的边缘态物性, 尤其是 Majorana 边缘模与缺陷点位的 Majorana 零能模 (Majorana zero mode, MZM) 的精准测量, 为 Kitaev 体系中非阿贝尔任意子的精准探测与相干操控开辟了全新路径^[76]。

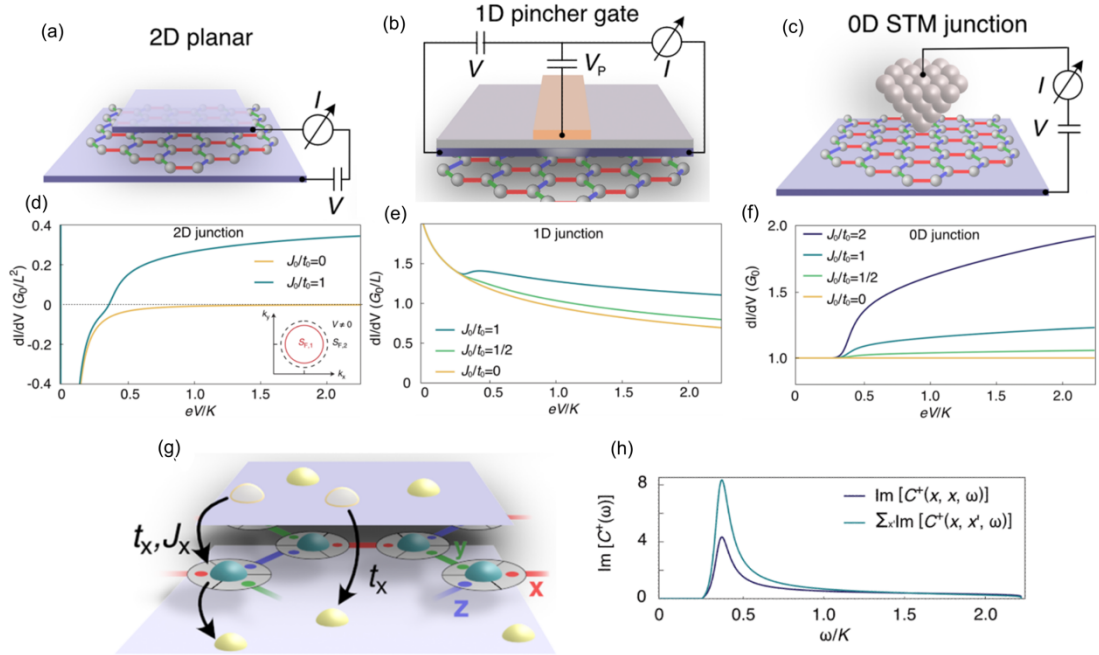


图 8. (a) 二维平面隧道器件结构; 将单层或少数几层量子自旋液体材料夹在两个二维金属电极之间, 例如石墨烯; (b) 一维夹断栅极结构; 在量子自旋液体块状晶体顶部构建横向一维隧道结结构。通过施加电压, 夹断栅极能在合适的电极材料中诱导出电绝缘区域, 以此作为一维隧道势垒; (c) STM 针尖与导电基

底之间的零维隧道结，该基底表面支撑着单层量子自旋液体材料。(d) - (f) 计算得到的不同隧穿结构中的 dI/dV 谱；(g) 金属-量子自旋液体-金属结构中相关隧穿过程的示意图。电子可以通过振幅为 t_x 的弹性隧穿，也可以通过振幅为 J_x 的非弹性隧穿，在量子自旋液体的分数化自旋自由度处发生自旋翻转散射。(h) 展示了 Kitaev 量子自旋液体的短程动力学自旋磁化率虚部随以 Kitaev 相互作用强度归一化的频率的演化规律，揭示了该体系源于 Z_2 规范场 vison 激发的本征自旋能隙，以及能隙以上自旋分数化产生的 Majorana 自旋子连续激发谱这一量子自旋液体的核心谱学指纹。Reprinted from Ref.^[76] with permission.

Figure 8. (a) Schematic of a two-dimensional planar tunneling device. A monolayer or few-layer QSL material is sandwiched between two 2D metallic electrodes, such as graphene; (b) Schematic of a one-dimensional pinched-gate structure. A lateral one-dimensional tunnel junction is fabricated on top of a bulk QSL crystal. By applying a gate voltage, the pinched gate can induce an electrically insulating region in an appropriate electrode material, which acts as a 1D tunneling barrier; (c) Zero-dimensional tunnel junction between an STM tip and a conducting substrate supporting a monolayer QSL material; (d)–(f) Calculated dI/dV spectra for the different tunneling structures; (g) Schematic of relevant tunneling processes in a metal–QSL–metal structure. Electrons can tunnel elastically with amplitude t_x , or inelastically with amplitude J_x via spin-flip scattering off the fractionalized spin degrees of freedom of the QSL; (h) Imaginary part of the short-range dynamical spin susceptibility of the Kitaev QSL plotted against frequency normalized by the Kitaev interaction strength. It reveals the intrinsic spin gap originating from Z_2 gauge field (vison) excitations, as well as the continuous Majorana spinon excitation spectrum above the gap from spin

fractionalization—both are characteristic spectroscopic fingerprints of the QSL state.

Reprinted from Ref.^[76] with permission.

3.2. 基于 STM/STS 研究 Kitaev 体系的理论进展

3.2.1. STM/STS 测量中的非弹性电子隧穿谱

STM/STS 凭借其本征的原子级空间分辨能力、超高能量分辨率与纳米尺度局域探测特性，在缺陷、台阶、畴界等局域位置处非阿贝尔 MZM 与拓扑手性边缘态的精准探测方面，展现出宏观表征手段无法比拟的独特优势。基于这一核心特性，近年来大量理论工作围绕 STM/STS 对 Kitaev QSL 体系的本征物性探测方案展开系统研究，逐步构建起完善的隧穿谱理论框架，为实验探索提供了精准、可落地的理论指引与方案设计。W. Kao 等人^[70,87] 理论构建了 “STM 针尖-Kitaev QSL 层-金属衬底” 垂直隧穿异质结结构，通过在 Kitaev QSL 体系中引入一定浓度的非磁性自旋空位，实现了局域 MZM 的可控诱导与电学探测，如图 9a 所示。理论计算表明，单个非磁性自旋空位会导致其周围 3 个六方元胞重构为 12 边形超元胞，并自发束缚携带 π 通量的局域规范场（图 9b 灰色区域），进而在空位处形成拓扑非平庸的局域化 MZM。在 STM 针尖与体系的非弹性隧穿过程中，隧穿电子可通过能量转移激发体系的双费米子态—即 MZM 对应的局域化费米子模激发；而该双费米子激发的跃迁概率由体系的动态自旋关联函数直接决定，非弹性隧穿微分电导与该关联函数呈严格正比关系。基于这一机制，MZM 诱导的低能双费米子激发会在微分电导谱中形成特征性准零偏压电导峰，最终实现了电中性 MZM 的全电学局域探测。该工作通过对比理论计算得到的不同原子位点隧穿谱、自旋关联函数随能量转移的演化规律，对上述探测方案进行了充分的自洽性验证，如图 9c-k 所示，为 Kitaev QSL 中局域 MZM 的实验探测提供了首个可直接落地的 STM 理论方案。随后，Shang-Shun Zhang 等人^[88] 的理论工作进一

步将研究对象从缺陷局域 MZM 拓展至 Kitaev QSL 的拓扑手性边界态，揭示了全新的边界隧穿探测机制。研究发现，Kitaev QSL 的边界处因晶格键结构的截断，会导致键上成对的 Majorana 费米子无法完成配对湮灭，进而形成拓扑非平庸的悬挂 Majorana 边缘态；外磁场可驱动该类悬挂模与体系的手性边缘态发生杂化，产生可通过 STM 直接探测的局域动态自旋结构因子特征信号。该方案直接破解了传统热霍尔效应测量中，声子斜散射背景与拓扑 Majorana 输运贡献难以解耦的领域长期痛点，提供了纯电学、兼具原子级空间分辨的局域化手性 Kitaev QSL 识别方法，突破了宏观积分式表征手段的固有局限，为手性 Kitaev QSL 的实验验证提供了具有排他性的确定性判据与可直接落地的实验路径。Johannes Feldmeier 等人^[75] 的理论工作进一步引入自旋分辨探测维度，系统探究了自旋极化扫描隧道显微镜 (spin-polarized STM, SP-STM) 这一自旋敏感的局域探测手段，在二维量子磁体电中性拓扑边缘态测量中的应用潜力。研究表明，通过调控针尖与衬底的自旋极化相对构型，可选择性放大特定自旋分量的激发信号，分离不同拓扑激发的信号，抑制非目标背景信号，使原本微弱的电中性自旋激发特征在隧穿谱中清晰显现。此外，通过对比体系体相与拓扑边界的局域隧穿信号，可直接区分并精准识别拓扑磁振子边缘态、Kitaev QSL 的手性 MZM 与 Z_2 规范通量分数化激发，进一步为二维拓扑磁体与量子自旋液体体系的本征物性验证，提供了兼具自旋分辨与原子级空间分辨的全新可落地实验方案。

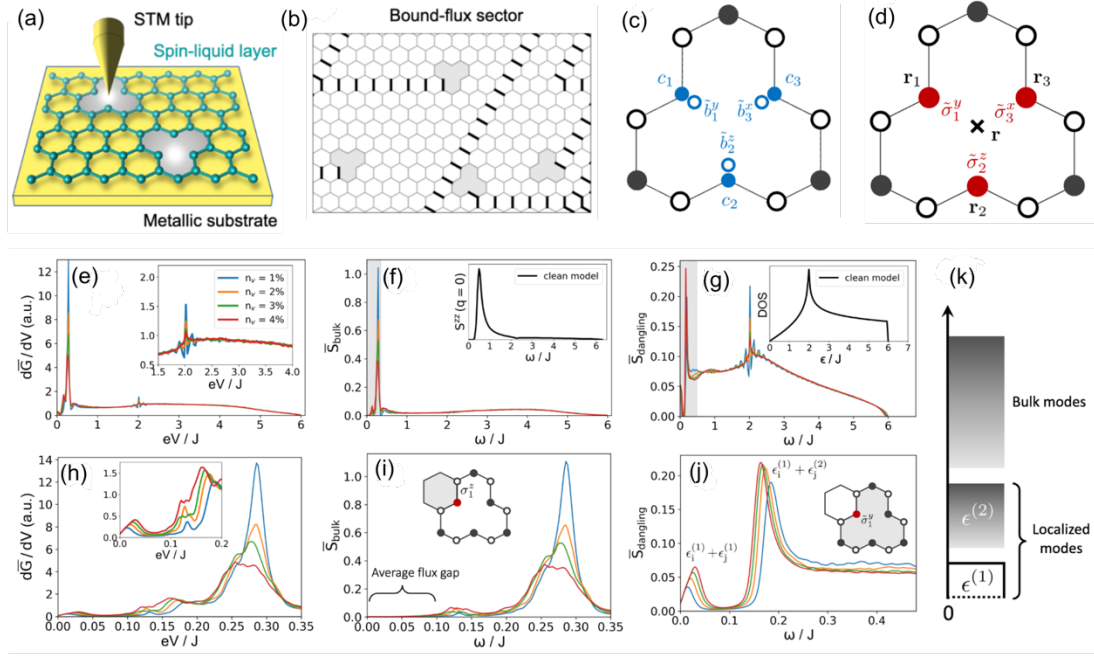


图 9. (a)通过 STM/STS 中非弹性电子隧穿实验设置探测 Kitaev QSL 中空位出局域的 Majorana 零能模的实验示意图。(b)引入空穴的 Kitaev 模型中的束缚通量相，其特征由通量本征值 $W_p=+1$ （白色）与 $W_p=-1$ （灰色）来表征。粗线表示具有规范场的键链，这些键将通量为 $W_p=-1$ 的元胞两两连接起来；(c)空位处自旋被挖走原来的键断掉，出现未配对的悬挂键费米子 $\tilde{b}_a^j$ ，它和体相费米子耦合，形成空位诱导的近零能 Majorana 模。(d)空位旁边的悬挂自旋会分数化 $\tilde{\sigma}_a^j = i\tilde{b}_a^j c_j$ ，这个悬挂自旋能和隧穿电子耦合，在 STM/STS 中测到 Majorana 零模；(e)不同空位浓度下，隧穿电导的导数随偏置电压的变化，内嵌图中放大了 1.5-4.0 eV/J 区间的信号；(h)为(e)图中的低电压放大区；(f)无序平均后的体自旋关联函数随能量转移的变化，内嵌图为无空位模型中的信号；(i)为(f)中低能区域的放大；(g)无序平均后的悬挂自旋关联函数随能量转移的变化，内嵌图对比了无空位模型中的信号；(j)为(g)中低能区域的放大；(k)包含物质费米子 c_j 与悬挂键费米子 $\tilde{b}_a^j$ 的二次费米子能谱示意图。Reprinted from Ref.^[70] with permission.

Figure 9. (a) Schematic illustration of probing the localized MZM induced by vacancies in the Kitaev QSL *via* IETS in STM/STS; (b) Bound flux phase in the hole-doped Kitaev model, characterized by flux eigenvalues $W_p=+1$ (white) and $W_p=-1$ (gray). Bold lines denote bonds carrying gauge fields, connecting pairs of unit cells with $W_p=-1$; (c) At a vacancy, the local spin is removed and original bonds are broken, giving rise to unpaired dangling-bond fermions $\tilde{b}_a^j$. These couple to bulk fermions and form vacancy-induced nearly zero-energy Majorana modes; (d) The dangling spin near the vacancy fractionalizes as $\tilde{\sigma}_a^j = i\tilde{b}_a^j c_j$. This dangling spin can couple to tunneling electrons, allowing Majorana zero modes to be detected in STM/STS; (e) Derivative of tunneling conductance versus bias voltage at different vacancy concentrations. The inset magnifies the signal in the 1.5–4.0 eV/J range; (h) Magnified low-voltage region of panel (e); (f) Disorder-averaged bulk spin correlation function versus energy transfer. The inset shows the signal in the vacancy-free model; (i) Magnified low-energy region of panel (f); (g) Disorder-averaged dangling-spin correlation function versus energy transfer. The inset compares the signal in the vacancy-free model; (j) Magnified low-energy region of panel (g); (k) Schematic quadratic fermion spectrum including matter fermions c_j and dangling-bond fermions $\tilde{b}_a^j$. Reprinted from Ref.^[70] with permission.

3.2.2. 电子隧穿中的解耦与复合

事实上，除低能非弹性隧穿过程外，隧穿电子与 Kitaev 体系的自旋关联、以及体系本征电子态之间还存在直接的量子映射关系，为分数化激发的探测提供了另一类核心路径。早在 2011 年，David F. Mross 与 T. Senthil 便在其开创性工作中指出^[89]：在具有自旋阻挫的弱关联 Mott 绝缘体中，尽管电子费米面会因 Mott 转变消失，但体系中仍存在由费米型中性自旋子构成的“幽灵费米面”；自旋子费

米面 $2k_F$ 波矢处的响应奇异性，会通过自旋子与物理电荷密度的内禀耦合传递至电荷通道，导致 Mott 绝缘体中杂质位点附近的电子密度产生空间慢衰减的电荷 Friedel 振荡，且振荡周期完全由自旋子费米面的 $2k_F$ 波矢决定。尤为关键的是，该类 Friedel 振荡的空间分布特征可通过 STM/STS 的原子级空间分辨测量实现直接观测，为自旋子费米面的存在提供直观的实验证据。

值得注意的是，QSL 中电中性自旋子分数化激发与隧穿电荷信号的关联机制，已在几何阻挫的三角晶格 QSL 体系中获得了理论与实验的系统性验证。借助极低温 STM/STS 表征，研究者在单层 1T-TaSe₂ 二维三角晶格 Mott 绝缘体中，通过异质结界面调控，首次在 Hubbard 带能区观测到与理论预言高度一致、由自旋子费米面失稳诱导的长波电荷超调制结构，并观测到了可验证费米型自旋子与局域磁矩（磁性杂质）存在的近藤（Kondo）共振信号^[90]。根据文献^[90]中的报道，电子隧穿进入 1T-TaSe₂ 后会发生自旋-电荷分离，分解为自旋子与电荷子，并在隧穿出体系时重新复合。在此过程中，处于 1T-TaSe₂ 内部的自旋子会与体系中其它自旋子形成关联，使得重新复合后的电子携带了体系自旋子的特征信息。因此，在表面电子态成像的快速傅里叶变换（FFT）图谱中，可以清晰观察到由自旋子费米面扰动所引发的特征性周期调制信号。该实验现象与理论预言的自旋子费米面失稳诱导电荷调制的结果高度吻合。针对这类具有自旋子费米面的 U(1)型量子自旋液体，后续理论工作系统解决了费米面型 QSL 的两个核心科学问题：其一，自旋-电荷分离体系中电子态的反常塞曼响应规律；其二，磁性杂质在费米面型 QSL 中诱导自旋子近藤效应的微观机制；同时给出了区分费米面 U(1)型 QSL 与有能隙 Z₂型 QSL、Dirac 型 QSL 的确定性实验判据^[91]。在实验方面，研究者在 1T-TaSe₂ 表面沉积磁性 Co 原子，利用 STM/STS 在隧穿电导谱中直接观测到

理论预言的、由自旋子费米子与磁性杂质散射引发的近藤共振峰^[92]。上述理论与实验结果共同证实,通过电子隧穿谱探测量子自旋液体中自旋子行为具有可行性。此外,后续研究在同构的单层 1T-NbSe₂体系中,不仅复现了 Hubbard 带能区的自旋子特征电荷超调制,更通过磁性分子吸附实验,直接观测到理论预言的自旋子近藤效应特征共振峰,完成了该理论框架的关键实验闭环,进一步确证了此类三角晶格体系的 U(1)型量子自旋液体基态^[93]。

值得注意的是,具有 Z₂拓扑序的本征 Kitaev QSL,其自旋子具有 Dirac 型色散关系,不存在自旋子费米面^[94],与前文所述的 U(1)型费米面量子自旋液体存在本质区别。针对电中性分数化拓扑激发与微观隧穿电荷信号的内禀关联、以及电子态对拓扑激发本征行为的映射机制,学界已在理论层面开展了系统性研究。

R. G. Pereira 与 Reinhold Egger 领衔的研究团队,从 Kitaev 候选材料对应的多轨道 Hubbard-Kanamori 模型出发,开展了一系列开创性理论工作^[77,73,95],率先建立了非阿贝尔 Kitaev QSL 中自旋-自旋关联函数与局域电荷密度分布的定量映射关系。该系列工作聚焦于 Mott 能隙以内的低能区间,基于电子虚隧穿的物理图像,破解了能隙内电中性拓扑激发与电荷通道的耦合难题。团队首次从理论上揭示:在 Kitaev QSL 中,束缚了 MZM 的 Z₂涡旋(即伊辛任意子),会在实空间诱导出可直接观测的局域非均匀电荷密度分布;该分布以涡旋中心为原点呈径向各向同性,随约化距离展现出 Friedel 型振荡特征,在远离涡旋的远场区域呈指数衰减,不诱导长程电荷有序。上述发现精准锚定了局域化拓扑零模激发的电荷响应特征,基于这一核心突破,团队提出了利用 STM/AFM 等表面探针技术实现伊辛任意子电学探测与电学调控的完整理论方案:通过 STM/STS 的微分电导成像,可直接绘制 Z₂涡旋周围原子级分辨率的电荷密度分布与电导特征指纹,实现涡

旋的实空间精准定位与拓扑激发的直接电学成像；同时该系列工作还系统厘清了拓扑 MZM 信号与磁性杂质诱导的平庸磁振子束缚态的谱学差异，为实验上区分拓扑非平庸激发与杂质诱导的平庸态提供了确定性的理论判据。

近期，Jahin 等人^[71]针对 Kitaev QSL 体系开展了准粒子干涉（quasiparticle interference, QPI）的系统理论研究。该工作建立了电子在 Mott 能隙以上直接隧穿进入 QSL 后的自旋-电荷分数化物理图像，严格证明 STM 隧穿微分电导是电荷子与 Majorana 自旋子局域态密度的卷积，提出了从电导信号中直接提取自旋子色散关系与 Dirac 点特征的标准化实验方案。相较于此前聚焦于 Mott 能隙内局域 Majorana 零模定性探测的系列工作，该研究突破了传统低能探测窗口的限制，实现了巡游型分数化激发的定量表征；其创新性地将体系缺陷从信号干扰项转化为 QPI 探测的核心散射源，所建立的理论框架可推广至多类 QSL 体系，同时具备对 QSL 相变边界的探测能力，为 Kitaev QSL 的实验验证提供了更具普适性与可操作性的全新理论路径。

综合上述系列理论工作，隧穿电子可通过两类核心物理过程与 Kitaev QSL 的分数化激发态发生内禀耦合，进而实现 Kitaev QSL 本征物性的实验探测：第一类为非弹性电子隧穿过程，隧穿电子会与 Majorana 自旋子、以及 Z_2 涡旋束缚的 MZM 发生能量交换，使隧穿谱中呈现特征能量损失信号（图 10a）；第二类过程中，隧穿电子进入 Kitaev 体系后，在体系自旋-电荷分离的本征特性支配下，会发生分数化并分解为 Majorana 自旋子与电荷子，最终在出射时重新复合为单个电子，该过程可被定义为解耦-复合电子隧穿过程（图 10b），其隧穿电流中天然包含了自旋子局域态密度的卷积信息；通过对隧穿电导实空间调制图案的精细分析，可直接解析出 Majorana 自旋子的态密度分布与本征激发行为。上述两类

核心隧穿机制，为利用 STM/STS 技术开展 Kitaev 量子磁性材料的本征物性研究提供了清晰、完整的理论框架，也为从全电学角度探测电中性 Majorana 分数化激发开辟了全新的实验范式。

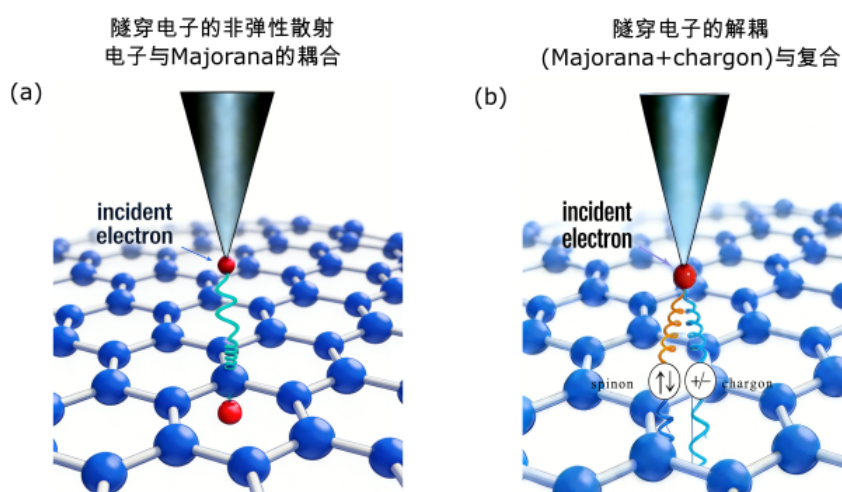


图 10. 电子隧穿 Kitaev 体系的两种机制, (a)电子与 Kitaev 体系中量子激发的非弹性隧穿; (b)电子进入 Kitaev 体系后受关联作用解耦为 Majorana spinon 与 chargon, 随着电子隧穿出 Kitaev 体系, 自旋子与电荷子又复合成单个电子, 此过程将电子态与 Majorana spinon 产生耦合。

Figure 10. Two mechanisms of electron tunneling in Kitaev systems. (a) Inelastic tunneling between electrons and quantum excitations in the Kitaev system; (b) An electron, upon entering the Kitaev system, is decoupled into a Majorana spinon and a chargon via strong correlations. As the electron tunnels out of the system, the spinon and chargon recombine into a single electron, coupling the electronic state to the Majorana spinon during the process.

3.3. 基于 STM/STS 实验的 α -RuCl₃ 研究进展

尽管理论层面已系统阐明了基于 STM/STS 探测 Kitaev QSL 的核心物理机制，并提出了多套具备高实验可操作性的表征方案，但在实际实验研究中，利用 STM/STS 开展 Kitaev QSL 体系本征物性的精准探测仍面临严峻的技术瓶颈与科学挑战。其核心瓶颈在于：Kitaev QSL 候选体系多为具有宽 Mott 能隙的强关联绝缘体，本征的高绝缘特性严重阻碍了 STM 针尖与样品间有效电子隧穿通道的构建，极大限制了隧穿信号的信噪比与测量的可重复性、稳定性。梳理当前 Kitaev QSL 体系的 STM/STS 研究进展不难发现，以 α - RuCl_3 为代表的范德华层状磁性材料，其二维极限下的单层/少层形态不仅可通过消除层间耦合最大程度贴合二维 Kitaev 蜂窝晶格模型的理想物理条件，也为突破隧穿效率瓶颈、实现高信噪比 STM/STS 测量提供了近乎理想的材料体系。

Ziatdinov 等^[96]完成了体相 α - RuCl_3 体系的首次原子级分辨 STM/STS 系统性表征。该工作通过原位机械解理获得了 α - RuCl_3 的原子级平整解理面，但由于样品仍具有较大的厚度，因此只在室温下开展了测量，其直接观测到的能隙宽度约 0.25 eV，首次从电子隧穿角度给出了室温下 α - RuCl_3 的能隙特征；同时通过高分辨 STM 成像，观测到由 Ru-Cl-Ru 键上电荷分布各向异性诱导的 $(\sqrt{3}\times\sqrt{3})$ R30° 电荷有序超结构，发现了三角型与二聚体型电荷序在纳米尺度的共存特征，直接证实了键依赖的各向异性相互作用在室温下可稳定存在；此外，该工作还结合扫描透射电子显微镜（STEM）表征，揭示了局域晶格畸变与表面电子态调制的内禀关联。随后，Jo 等人^[97]在 78 K 下开展 STM/STS 表征，测得的能隙宽度约为 1.5 eV，与上述室温测量结果存在显著差异。该研究同时发现一个关键现象：通过有机阳离子插层掺杂，可在不破坏 α - RuCl_3 二维蜂窝晶格结构的前提下，实现能隙的连续、可逆调控，将能隙由 1.5 eV 连续收缩至 0.9 eV；但在进一步重掺杂后，

体系并未发生绝缘体–金属相变，而是始终保持绝缘态的本征特征。类似能隙变化也在角分辨电子能谱（ARPES）实验中被观测到^[98]。这与能带绝缘体及常规 Mott 绝缘体的掺杂响应截然不同，相关物理机制目前仍未得到合理解释。2022 年，复旦大学 Z. Wang 等人^[99,100]基于分子束外延（Molecular Beam Epitaxy, MBE）技术，在石墨衬底上开展 α -RuCl₃ 薄膜的制备，证实单层 α -RuCl₃ 薄膜可通过升华 α -RuCl₃ 粉末的方式实现范德华外延生长；结合原位 STM/STS 测量，证实该单层 α -RuCl₃ 在 4.2 K 下具有宽度约 0.6 eV 的完整 Mott 能隙，并直接获得 t_{2g} - p_{π} 与 e_g - p_{σ} 轨道杂化的实空间可视化纹理，明确了其 Mott 绝缘的本征属性。上述系列 STM/STS 研究中，测量温度、样品维度与衬底环境的差异，导致 α -RuCl₃ 的 Mott 能隙测量值出现了近一个数量级的显著偏差，这一现象也成为当前 α -RuCl₃ 本征物性研究中亟待厘清的核心科学问题之一。事实上，在过去十余年的研究中，不同实验技术测得的 α -RuCl₃ 能隙值分布在 0.2 eV~2.2 eV 的极宽范围内，跨度超过 2 eV；这一长期存在的认知分歧，也导致学界对该材料最核心的 Mott 绝缘态本征属性，至今仍未形成统一、清晰的共识^[15,96,101–105]。

自 2020 年起，本课题组围绕 α -RuCl₃ 体系，系统开展了体相单晶与少层薄膜的可控制备，以及基于 STM/STS 的原子尺度本征物性表征研究。研究初期，我们通过惰性气氛下原位机械解理与定点转移技术，在高定向热解石墨（HOPG）衬底上构筑了 α -RuCl₃ 范德华异质结，并对不同厚度的 α -RuCl₃ 薄膜进行了系统的 STM/STS 表征。实验结果表明，在 77 K 液氮温区下，当薄膜厚度不超过 10 nm 时，STM 测量中可形成稳定的电子隧穿通道，进而高质量获取样品表面的原子级形貌图像与隧穿微分电导谱（如图 11b, c 所示）。基于上述系统表征，我们在液氮温区下明确证实：厚度大于 5 nm、可完整反映 α -RuCl₃ 体相本征物性的少

层薄膜，其能隙宽度约为 2 eV ^[106]；能隙范围内未观测到任何可分辨的隙内电子态，为该体系的本征 Mott 绝缘属性提供了直接的实验证据（如图 11c 所示）。与此同时，我们还发现受范德华异质结界面电荷转移与衬底邻近效应调控^[107]，当 $\alpha\text{-RuCl}_3$ 厚度减小至 4 ML 及以下时，在衬底电荷掺杂作用下其 Mott 能隙会发生显著且连续的改变；但在无晶格畸变的条件下，体系仍未出现绝缘体–金属相变（图 11d, e）^[106]，这一结果与前期插层掺杂研究的结论相一致^[97]；该发现也为石墨衬底上外延生长的单层 $\alpha\text{-RuCl}_3$ 能隙仅为 0.6 eV 的实验现象^[99,100] 提供了合理的微观物理机制解释。此外，在 3 ML 与 4 ML $\alpha\text{-RuCl}_3$ 的边界区域，我们清晰观测到隧穿谱在边界处的连续演化行为（图 11f）：下 Hubbard 带权重逐步向低能区转移，并在能隙两侧伴随出现显著的干涉峰特征^[106]。但对于这种演化背后的物理机制仍缺乏清晰的理解，是否有新的电子关联相出现仍需要更多的实验研究。

为厘清少层 $\alpha\text{-RuCl}_3$ 能带结构的异常演化规律，我们对少层薄膜样品开展了系统的实验研究。通过大量重复性测量证实，少层薄膜中观测到的能隙减小行为并非其本征物性，而是衬底邻近效应诱导的结果（图 12a 所示）。然而，对于机械转移单层样品中本征大能隙的保持行为，尤其是其与原位生长单层 $\alpha\text{-RuCl}_3$ 薄膜中能隙显著降低现象的本质差异，目前我们尚未形成明确的物理认知。事实上， $\alpha\text{-RuCl}_3$ /石墨烯异质结的界面物理效应早已被广泛研究。理论计算与实验结果一致证实，该异质结界面存在显著的电荷转移（面密度约 $\sim 3 \times 10^{13}\text{-cm}^{-2}$ ），电子由石墨烯层向 $\alpha\text{-RuCl}_3$ 层转移，不仅使石墨烯层呈现出显著的 p 型掺杂特征^[107,108]，还在界面处诱导出多种新颖的光电响应行为^[109–113]。然而， $\alpha\text{-RuCl}_3$ 在承受如此高强度电子掺杂时，并未发生预期的 Mott 绝缘体–金属相变，仅表现出能隙的显著减小，

这一反常现象至今仍缺乏合理的微观物理机制解释。针对这一核心科学问题，我们对衬底邻近效应调控下的小能隙 3 ML α - RuCl_3 薄膜，开展了能量分辨的 dI/dV 面扫描表征（图 12b），在样品表面电子态中清晰观测到了随能量演化的轨道纹理特征^[114]。其中一项关键发现为：在负样品偏压下（对应能隙下方的下 Hubbard 带附近），可清晰观测到来自 Cl 原子轨道的电子态信号，这表明 α - RuCl_3 与石墨烯形成异质结后，Cl 原子的轨道能级被抬升至原 Mott 能隙范围内。这一实验结果直接证实：界面转移的电荷并非直接填充到 α - RuCl_3 的 Mott-Hubbard 能带体系中，而是优先占据 Cl 原子轨道，并将其能级抬升至原 Mott 能隙之内（图 12c），进而驱动体系由传统 Mott 绝缘体向电荷转移绝缘体发生转变（图 12d）^[114]。

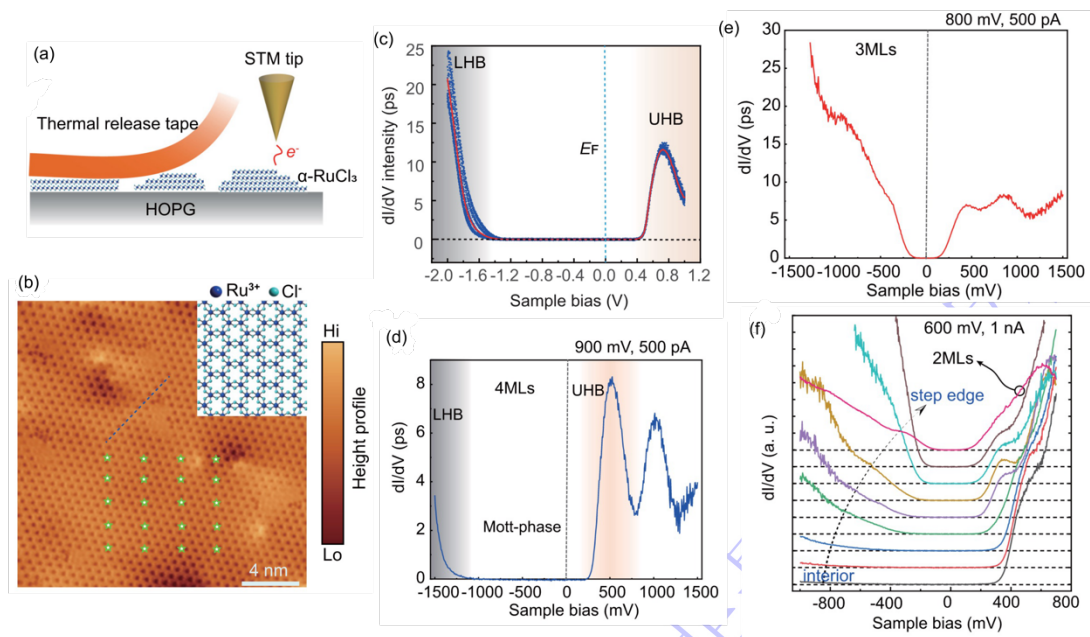


图 11. (a) 实验装置示意图。不同厚度的 α - RuCl_3 薄片经热释放胶带转移，通过 STM/STS 开展电子隧穿表征；(b) 厚度大于 5 nm 的 α - RuCl_3 薄片的 STM 形貌图，可以清晰看到 α - RuCl_3 晶格上存在少量的空位缺陷。插图为对应晶格结构；(c) 图为 (b) 图中标记星标位置测得的 dI/dV 谱（深蓝色曲线）及平均化谱线（红色曲线），测得全带隙宽度约为 1.8 ± 0.2 eV；(d) 与 (e) 分别为 4 ML 与 3 ML

α -RuCl₃的平均 dI/dV 谱，两条谱线表明从 4 ML 减薄至 3 ML 时出现了 Mott 能隙的显著降低；(f) 在 4 ML 表面靠近 3 ML 的边界处的 dI/dV 谱线，结果清晰展现了能隙由体态大带隙向薄层小带隙的连续演化过程，在此过程中下 Hubbard 带权重向低能方向转移，同时伴随着上 Hubbard 能带带边出现与下 Hubbard 相对应的相干峰。Reprinted from Ref.^[106] with permission.

Figure 11. (a) Schematic of the experimental setup. α -RuCl₃ flakes of varying thickness are transferred via heat-release tape and characterized by electronic tunneling using STM/STS; (b) STM topography of an α -RuCl₃ flake thicker than 5 nm. Sparse vacancy defects are clearly visible on the α -RuCl₃ lattice. Inset: corresponding lattice structure; (c) dI/dV spectra (dark blue curves) measured at different positions (marked by stars) in panel (b) and the averaged spectrum (red curve). The full band gap is measured to be approximately 1.8 ± 0.2 eV; (d), (e) Averaged dI/dV spectra of 4 ML and 3 ML α -RuCl₃, respectively. The two spectra indicate the evolution of the Mott gap as the thickness is reduced from 4 ML to 3 ML; (f) dI/dV spectra taken across the boundary region between 3 ML and 4 ML α -RuCl₃, clearly showing the continuous narrowing of the gap from the large bulk gap to the smaller thin-film gap, together with the weight transfer of the lower Hubbard band toward lower energies. Reprinted from Ref.^[106] with permission.

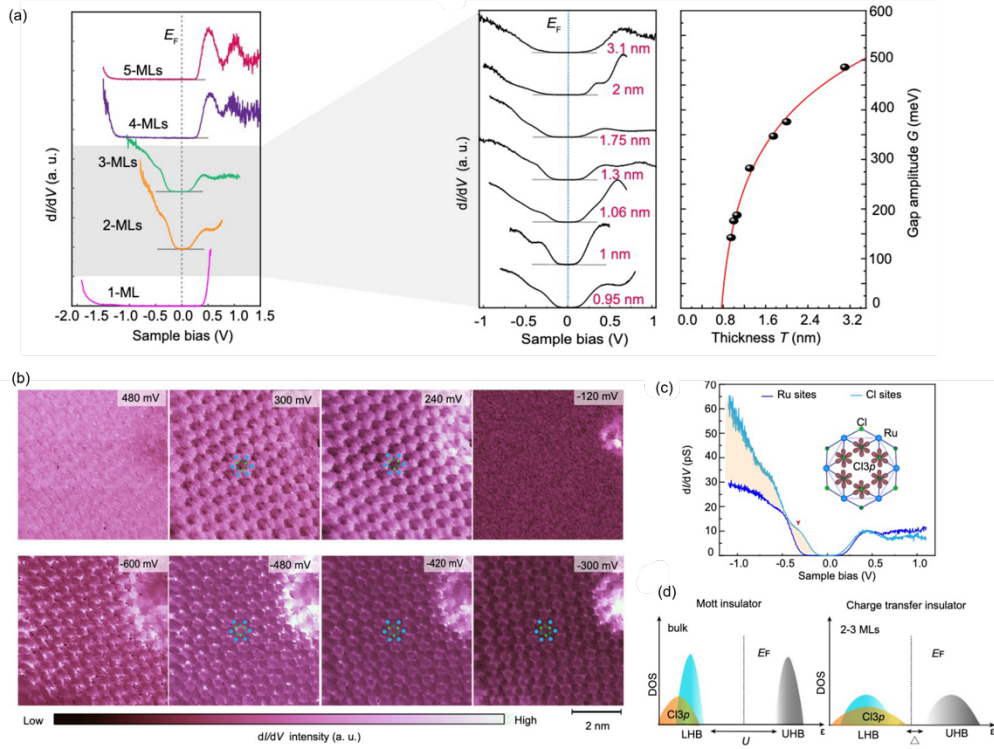


图 12. (a)左侧：在厚度为 1 ML–5 ML 的 α -RuCl₃薄片上测得的代表性 dI/dV 谱，呈现出两类典型线型：一类表现为较大的能隙特征，另一类则能隙显著减小。右侧：对大量表现为小能隙的样品进行统计后发现，在相同层数（2 ML–3 ML）的 α -RuCl₃薄片中，因转移过程中与衬底的贴合程度不同，测量面到衬底的实际距离存在差异，使得 dI/dV 谱中的能隙表现出明显的厚度依赖性。通过拟合得到能隙幅值 G 与厚度 T 的依赖关系，采用对数函数形式： $G = \alpha + \beta \ln(T + \gamma)$ （其中 α 、 β 、 γ 为拟合常数）；(b) 在 3 ML 样品表面获得的能量分辨 dI/dV 成像图显示，当样品偏压处于负偏压且接近能隙区域时，电子态成像中可清晰观测到由 Cl 轨道贡献的空间纹理结构。(c)分别在 Ru 原子位与 Cl 原子位采集的 dI/dV 谱对比表明，Cl 原子位上能隙相关的电子态更为显著；插图为对应由 Cl3p 轨道主导形成的轨道纹理。(d) 从 Mott 绝缘体到电荷转移绝缘体的转变示意图，其中配体电子

能级抬升并嵌入原 Mott 能隙内部，是实现电荷转移绝缘体特征的关键机制。

Reprinted from Ref. [114].

Figure 12. Left panel: Representative dI/dV spectra measured on α - RuCl_3 flakes with thicknesses ranging from 1 ML to 5 ML exhibit two typical line shapes: one characterized by a large gap, and the other with a significantly reduced gap. Right panel: Statistical analysis on a large number of small-gap samples reveals that, for α - RuCl_3 flakes with the same layer number (2 ML–3 ML), the distance from the measurement surface to the substrate varies due to different contact strengths with the substrate during the transfer process, leading to a pronounced thickness dependence of the gap in the dI/dV spectra. The relationship between the gap magnitude G and thickness T is fitted using a logarithmic function: $G = \alpha + \beta \ln(T + \gamma)$, where α , β , and γ are fitting constants; (b) Energy-resolved dI/dV maps acquired on the surface of a 3 ML sample show that distinct spatial textures originating from Cl orbitals can be clearly resolved in the electronic state imaging when the sample bias is negative and near the gap region; (c) Comparison of dI/dV spectra taken individually at Ru and Cl atomic sites demonstrates that gap-related electronic states are more pronounced at Cl sites. The inset shows the orbital texture dominated by Cl 3p orbitals; (d) Schematic illustration of the transition from a Mott insulator to a charge-transfer insulator, in which the elevation of ligand electronic levels into the original Mott gap constitutes the key mechanism responsible for the characteristic behavior of charge-transfer insulators. *Reprinted from Ref. [114].*

上述研究表明，异质结界面电荷掺杂仅能驱动 α - RuCl_3 从 Mott 绝缘体向电荷转移绝缘体转变，无法诱导体系发生绝缘体-金属 Mott 相变。由此引出核心科学问题：是否存在有效调控手段，可将掺杂电子直接注入 Mott-Hubbard 能带内部，进而触发本征 Mott 相变？晶格应变是调控强关联体系电子结构、驱动 Mott

相变的关键因素，为此，我们进一步针对 α - RuCl_3 Mott 绝缘态的本征稳定性开展了系统的实验表征。结果显示，即便晶格中存在低浓度空位缺陷与局域晶格畸变， α - RuCl_3 的 Mott 能隙仍表现出极强的鲁棒性，证明单纯的局域晶格畸变无法独立诱导 Mott 相变的发生。与之形成鲜明对比的是，我们在单层 α - RuCl_3 /石墨异质结中发现，微小的晶格畸变即可引发界面电子态的显著重构，进而成功触发绝缘体-金属 Mott 相变。该过程可将原本局域在界面 Cl 轨道的掺杂电子，有效转移至 Mott-Hubbard 能带中，最终导致体系的 Mott 能隙完全闭合，如图 13 所示^[115]。这一发现不仅为基于范德华异质结与应变工程精准调控 α - RuCl_3 薄膜的 Mott 相变提供了全新的实验方案，也为在该自旋阻挫体系中探索非常规超导等新奇量子物态开辟了新的研究路径。

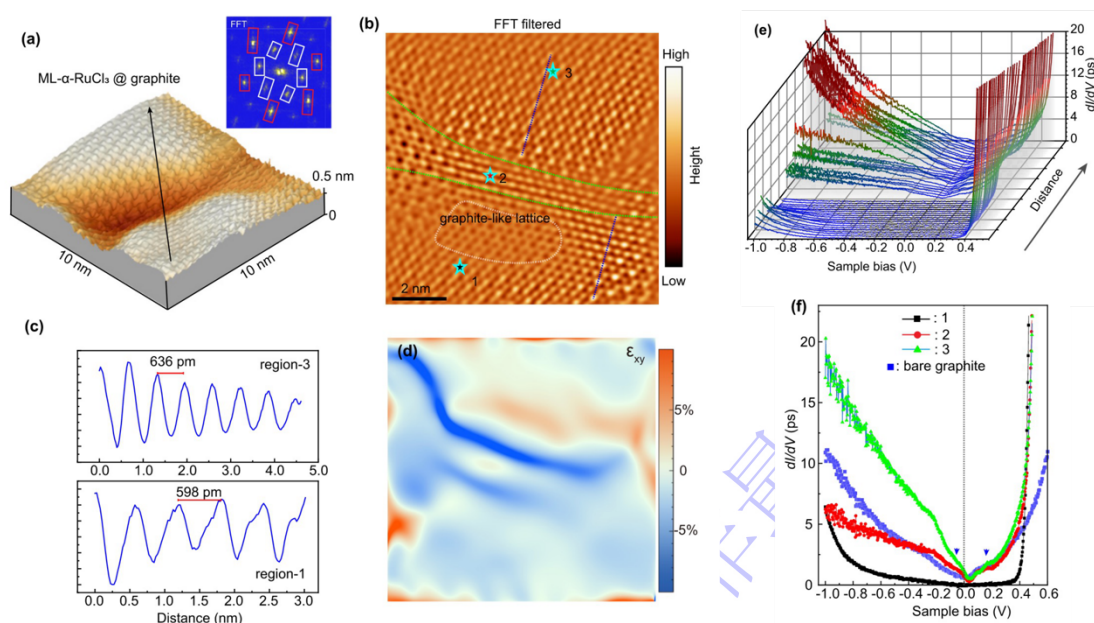


图 13. (a) 单层 α - RuCl_3 的 STM 原子级形貌图，可清晰观察到薄膜表面起伏；插图为图像的快速傅里叶变换（FFT）图，可见对应 Ru 原子（白色方框）与 Cl 原子（红色方框）的布拉格峰，以及由晶格应变导致的峰位偏移；(b) FFT 滤波后的 STM 图像显示，表面起伏将其划分为三个区域（记为区域 1、2、3），各

区域呈现不同程度的晶格应变。(c) 沿(b)中虚线提取的高度轮廓表明：区域 1 晶格几乎无畸变，晶格常数 $a=6\text{ \AA}$ ；区域 2 晶格被压缩；区域 3 晶格显著拉伸，晶格常数 $a=6.36\text{ \AA}$ 。(d) 由几何相位分析 (GPA) 得到的应变场分布图，以应变张量的 xy 分量表示。(e) 77 K 下在不同应变区域采集的 dI/dV 谱，展示了能带结构随应变的演化：区域 1 保持完整的 Mott-Hubbard 能隙，而存在晶格畸变的区域 2 与 3 中 Mott 能隙完全闭合。(f) 77 K 下分别从三个区域采集的典型 dI/dV 谱；下方蓝色曲线为纯石墨衬底的 dI/dV 谱。Reprinted from Ref.^[115] with permission.

Figure 13. (a) Atomic-resolution STM topography of monolayer α -RuCl₃, where distinct surface undulations can be clearly observed. Inset: Fast Fourier transform (FFT) of the image, showing Bragg peaks corresponding to Ru atoms (white box) and Cl atoms (red box), as well as peak shifts induced by lattice strain; (b) FFT-filtered STM image showing that the surface undulations divide the flake into three regions (labeled 1, 2, 3), each exhibiting different degrees of lattice strain; (c) Height profile extracted along the dashed line in (b), indicating negligible lattice distortion in Region 1 with a lattice constant $a = 6\text{ \AA}$, compressed lattice in Region 2, and significantly stretched lattice in Region 3 with $a = 6.36\text{ \AA}$; (d) Strain field map obtained by geometric phase analysis (GPA), shown as the xy component of the strain tensor; (e) dI/dV spectra taken at 77 K in different strained regions, showing the evolution of the band structure with strain: Region 1 retains a full Mott–Hubbard gap, while the Mott gap is fully closed in distorted Regions 2 and 3; (f) Typical dI/dV spectra taken at 77 K from the three regions, respectively. The lower blue curve shows the dI/dV spectrum of the bare graphite substrate. Reprinted from Ref.^[115] with permission.

此外,针对目前不同实验条件下 α - RuCl_3 本征能隙测量结果存在显著分歧的领域痛点,我们针对体相 α - RuCl_3 单晶样品开展了系统的变温 STM/STS 测量^[116]。实验结果表明, α - RuCl_3 的体相 Mott 能隙表现出强烈的温度依赖性,如图 14a 所示:低温下能隙宽度超过 2 eV,随温度升高能隙显著减小,至室温时已近乎闭合,这一结果与早期室温 STM/STS 研究中报道的近零能隙谱学特征高度吻合^[96]。直接厘清了长期以来 α - RuCl_3 本征能隙测量结果存在分歧的核心诱因。通过高分辨率的变温谱学表征,我们进一步发现体系的 Mott 能隙在 100 K 附近发生显著的快速软化(图 14b)。该特征温度与多种光谱学、电输运测量中观测到的本征物性异常转变温度完全吻合^[117,118],恰好对应 α - RuCl_3 从高温常规顺磁态向低温 Kitaev 量子顺磁态转变的特征温区。由此引出核心科学问题:该能隙快速软化行为是否与体系自旋关联特性的温度演化直接相关。与此同时,体相 α - RuCl_3 在 120–150 K 的相近温度区间还存在晶体结构相变,二者温区的高度交叠,进一步为厘清该能隙演化的微观物理机制带来了挑战。

为厘清 Mott 能隙软化、晶体结构相变与磁相变三者间的内在关联,解决体相 α - RuCl_3 中结构相变与自旋关联演化温区高度交叠、无法解耦各自对电子态调控作用的核心难题,我们在已有实验研究的基础上^[99,100],开展了单层 α - RuCl_3 薄膜的可控生长与系统表征——利用单层体系可完全规避体相固有结构相变的干扰,从而孤立自旋关联演化对 Mott 能隙的调控作用。针对 α - RuCl_3 外延生长中易出现杂相污染的关键问题,我们通过对前驱体粉末开展多轮真空升华预提纯处理,有效消除了 β - RuCl_3 杂相对材料本征物性的干扰;结合原位 MBE 升华生长技术,成功制备出大面积、原子级平整的高质量单层 α - RuCl_3 单晶薄膜(图 14c、d)^[116]。系统的变温 STS 表征结果显示,尽管单层 α - RuCl_3 的本征能隙较体相有所减小,

但其 Mott 能隙仍表现出与体相一致的强温度依赖性：在 $T < 110\text{ K}$ 的低温区间，能隙稳定维持在约 0.6 eV ，与已有报道的单层样品实验结果高度吻合^[99,100]；当温度升高至 110 K 附近时，能隙发生急剧坍塌（图 14e、f）。得益于单层体系完全排除了体相 $\alpha\text{-RuCl}_3$ 中晶体结构相变对电子态演化的干扰，我们首次明确了 $\alpha\text{-RuCl}_3$ 的 Mott 能隙温度演化行为与晶格结构相变无直接关联，其核心驱动因素指向体系自旋关联态的温度演化^[116,119]。基于此，我们认为在 Kitaev 相互作用占据主导的低温区间，自旋的量子关联显著增强了电子局域化行为，进而稳定了体系的 Mott 能隙^[120]。

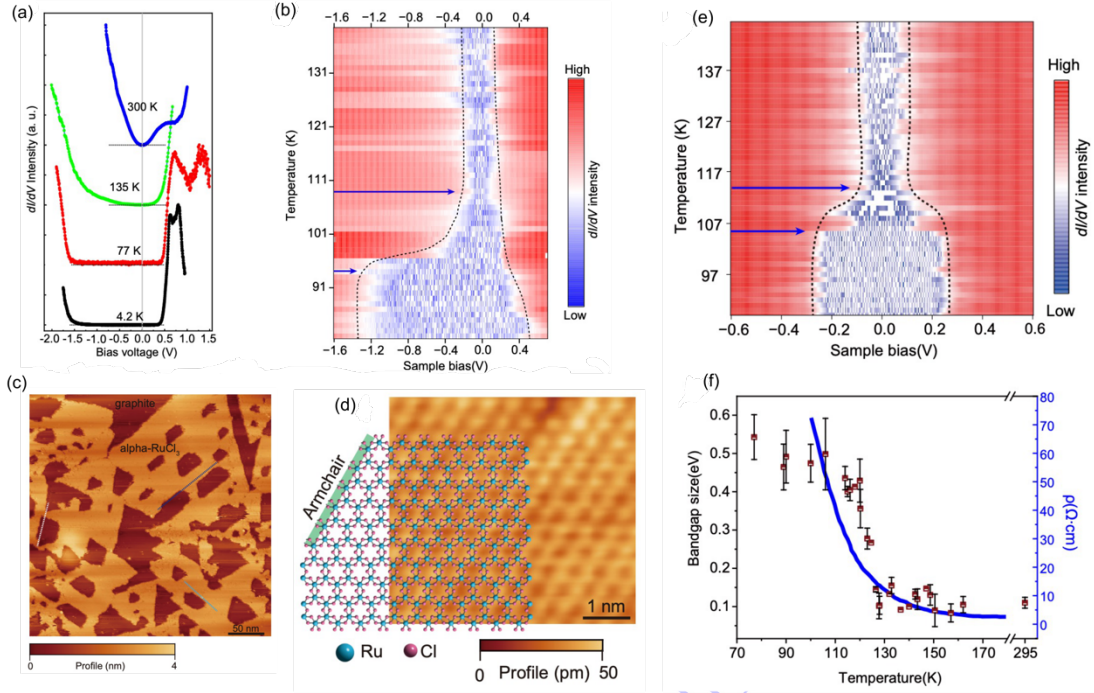


图 14. (a)在不同温度下对转移后的厚 $\alpha\text{-RuCl}_3$ 薄片进行测量得到 dI/dV 谱线随温度的变化；(b) 厚 $\alpha\text{-RuCl}_3$ 薄片的 dI/dV 谱线随温度变化的精细测量显示器在 100 K 附近出现软化情况；(c)在石墨衬底上利用 MBE 生长的单层 $\alpha\text{-RuCl}_3$ 薄膜的 STM 图；(d)原子分辨测量显示其晶格形貌；(e)单层 $\alpha\text{-RuCl}_3$ 上测得的随温度变化的 dI/dV 谱；(f) 单层 $\alpha\text{-RuCl}_3$ 的电荷能隙幅值随温度的变化曲线。如图中实线所

示，实验观测到的能隙软化行为与电阻率的快速下降高度吻合，该实线数据取自文献^[113]的电子输运测量结果。Reprinted from Ref.^[116].

Figure 14. (a) Temperature-dependent dI/dV spectra measured on transferred thick α - RuCl_3 flakes; (b) High-resolution measurement of the temperature evolution of dI/dV spectra for thick α - RuCl_3 flakes, showing gap softening near 100 K; (c) STM image of a monolayer α - RuCl_3 film grown on a graphite substrate by MBE; (d) Atomic-resolution image revealing the lattice morphology; (e) Temperature-dependent dI/dV spectra measured on monolayer α - RuCl_3 ; (f) Temperature dependence of the charge gap magnitude in monolayer α - RuCl_3 . As shown by the solid line, the experimentally observed gap softening coincides well with the rapid drop in resistivity; the solid line is taken from electronic transport measurements reported in Ref. [106]. Reprinted from Ref.^[116].

近期一项针对 Kagome 型与 Kitaev 型量子自旋液体的理论研究，系统阐释了体系从高温经典顺磁态向低温 QSL 基态降温过程中的量子纠缠演化规律，首次揭示了 QSL 中量子纠缠形成的两步普适性图景：在自旋可分离温度 T_{sep} 以下，顺磁态的自旋首次打破可分离性，形成二体纠缠；在更低的真多体纠缠特征温度 T_{GME} 以下，体系则建立起仅存在于自旋环结构中、为 QSL 基态所特有的真多体纠缠^[121]。其中，二体纠缠的建立，可在电子单格点 Mott 局域化的基础上，进一步稳定电荷的局域特性，抑制电子巡游化与常规长程磁有序的形成；同时将与电子局域化相关的量子关联尺度从单格点扩展至近邻格点，为自旋自由度脱离电荷局域约束、形成巡游型分数化激发提供了核心物理前提。由此可见，我们实验中观测到的 Mott 能隙在 110 K 附近的重整化行为，是否与 Kitaev 体系中的自旋量子纠缠态演化存在直接内禀关联，仍是后续值得深入探究的关键科学问题。

除 STM/STS 表征外，平面隧穿器件电学测量也为 α -RuCl₃ 的维度调控效应提供了关键实验佐证。Yang 等人^[72]基于机械剥离的少层 α -RuCl₃ 薄膜制备了平面电子隧穿器件，通过隧穿电流的系统分析，首次发现单层 α -RuCl₃ 会因结构对称性破缺发生晶格畸变，进而导致非对角交换耦合的符号反转，磁各向异性从体相的易面型反转为易轴（面外）型，同时本征 Kitaev 相互作用显著增强，这一结果从实验上证实了单层 α -RuCl₃ 体系比体相材料更贴近理想 Kitaev 模型的理论预期。

3.4. 基于隧穿电子学方法测量 Kitaev Majorana 的分析

上述基于 STM/STS 的系统实验研究，不仅为精准解析 Kitaev QSL 核心候选材料 α -RuCl₃ 体系的 Mott 物理本源提供了一系列关键实验支撑，更通过系统厘清该体系的 Mott-Hubbard 能带结构特征、Mott 能隙的外场与维度调控规律，为该体系中分数化激发的直接实验探测构建了核心方法学基础。目前，基于 STM/STS 实现 α -RuCl₃ 中分数化激发的实验探测，主要可归纳为两类核心隧穿机制与对应的测量策略：第一类为 Mott-Hubbard 能带带边主导的自旋-电荷解耦-复合隧穿机制（见图 15a），第二类为 Mott 能隙内的低能非弹性散射隧穿机制（见图 15b）。无论采用何种隧穿测量策略，制备原子级平整、低缺陷密度的高质量 α -RuCl₃ 薄膜样品，尤其是本征单层薄膜的机械剥离或原位外延生长，是构建稳定隧穿结势垒、实现高信噪比、高可靠性谱学测量的核心前提。

两类隧穿机制的精准调控，核心依赖于 STM 针尖与样品表面的间距精准控制：隧穿电流与针尖-样品间距 d 呈严格的指数依赖关系，可表述为 $I \propto e^{-2\kappa d}$ （其中 κ 为隧穿势垒的衰减系数），这为两类机制的可逆切换与精准锁定提供了核心实验手段。当针尖与样品表面间距较大时（对应图 15a 的隧穿构型），隧穿电子必须以 α -RuCl₃ 的上、下 Hubbard 能带作为隧穿中间态，才能完成从针尖到金属

衬底的隧穿过程。在此构型下 STS 谱主要反映 α - RuCl_3 本征的 Mott 能带结构与能隙特征但卷积自旋子激发信息：隧穿电子进入 α - RuCl_3 后发生自旋-电荷分离，分数化为自旋子与电荷子，其中电荷子的输运被限制在 Hubbard 能带中，能隙内的低能激发无法直接被隧穿过程探测；但当隧穿电子离开 α - RuCl_3 层时，自旋子与电荷子会重新复合为电子，自旋子的低能激发信息会被卷积到隧穿谱的带边线形中，为分数化激发的间接探测提供了核心通道。当针尖逐渐逼近单层或少层 α - RuCl_3 样品表面时，隧穿势垒的空间构型发生本质改变：原本作为隧穿中间态、被探测对象的 α - RuCl_3 绝缘层，在隧穿结中转变为连接针尖与金属衬底的核心隧穿势垒，进而打开 Mott 能隙内的低能非弹性隧穿通道（对应图 15b 的隧穿构型）。在此构型下，隧穿电子无需经由 Hubbard 能带输运，可直接在 Mott 能隙内发生隧穿过程，并与能隙内的低能自旋激发态——包括 Kitaev QSL 相的分数化 Majorana 束缚态发生强非弹性相互作用；该相互作用的特征会直接编码于隧穿谱的能隙内信号中，为 α - RuCl_3 中分数化自旋激发的本征动力学与微观特征研究，提供了具备原子级空间分辨的直接实验探针。

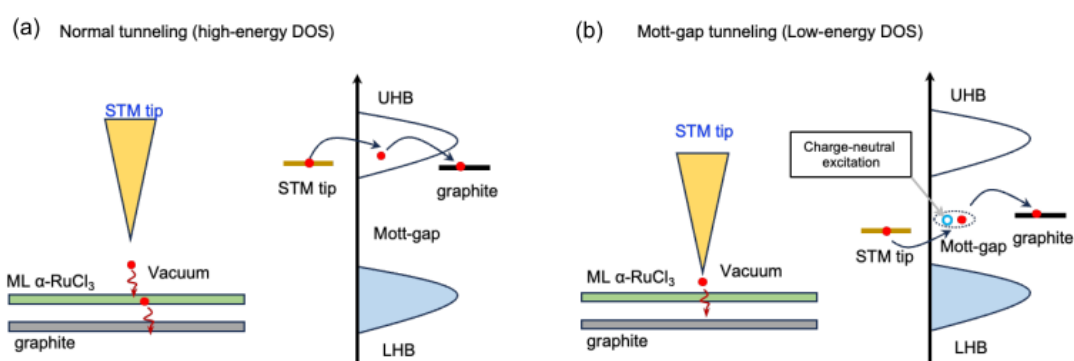


图 15. (a) 电子借助 Mott 绝缘体的 Hubbard 能带实现隧穿，整个隧穿过程包含三个关键步骤：电子注入后解耦为自旋子与电荷子，随后二者在隧穿出体系前重新复合；(b) 电子在 Mott 能隙中的隧穿行为具有明显的距离依赖性与维度依赖

性：当 STM 针尖与样品表面距离较远时，Mott 能隙可有效阻挡电子隧穿，隧穿谱中会清晰呈现 Mott 能隙特征；当针尖与样品距离较近，且 Mott 绝缘体为单层结构时，电子可实现能隙隧穿，此过程中电子与电中性激发（如 Majorana 束缚态）发生耦合并产生能量损失，最终完成非弹性隧穿。

Figure 15. (a) Electron tunneling via the Hubbard bands of a Mott insulator. The full tunneling process involves three key steps: the injected electron decouples into a spinon and a chargon, which then recombine before tunneling out of the system; (b) Tunneling of electrons across the Mott gap exhibits strong distance and dimensional dependence. When the STM tip is far from the sample surface, the Mott gap efficiently suppresses electron tunneling, and the Mott gap feature appears clearly in the tunneling spectrum. When the tip-sample distance is small and the Mott insulator is in monolayer form, electrons can tunnel across the gap. In this process, electrons couple to neutral excitations such as Majorana bound states with energy loss, resulting in inelastic tunneling.

在自旋-电荷解耦-复合隧穿机制下，我们与国际上两个研究团队同期独立的在 α - RuCl_3 体系中观测到一类显著的非公度电子态调制现象^[122,114,123]。三项独立工作采用截然不同的样品制备与异质结构建方法，却一致观测到了本质相同的非公度电子态调制特征：我们通过惰性气氛下机械解理与定点转移制备了 α - RuCl_3 /石墨烯异质结，发现靠近石墨衬底的薄层 α - RuCl_3 发生从 Mott 绝缘体到电荷转移绝缘体的转变，伴随能隙显著减小，并在下 Hubbard 带边观测到非公度超周期电子态调制^[114]，如图 16a-c 所示；日本研究团队利用脉冲激光沉积（PLD）技术在石墨衬底上直接外延生长单层 α - RuCl_3 薄膜，在晶格缺陷附近、上下 Hubbard 带边对应的能量区间也观测到了量子干涉条纹，而这种干涉条纹在上下 Hubbard 带

中具有不同的震荡周期，其中下 Hubbard 带中的震荡与 α - RuCl_3 晶格具有非公度的周期匹配，与我们课题组的实验结果具有高度一致性^[122]，如图 16d-e 所示。此外，新加坡研究团队也利用 STM/STS 对单层石墨烯覆盖的 α - RuCl_3 样品进行了系统表征，其通过调制衬底偏压将石墨烯作为透明隧穿层实现对 α - RuCl_3 本征电子态的测量^[115]。此工作同样在相近下 Hubbard 能带中观测到了非公度超周期电荷调制^[123]。三项研究均系统排除了莫尔超晶格、常规电荷密度波（CDW）、准粒子干涉（QPI）以及 zigzag 型反铁磁有序等平庸起源，使得该非公度调制的微观物理机制成为该领域亟待揭示的关键科学问题。其中，日本研究团队将观测到的非公度量子干涉直接归因于 Kitaev QSL 中巡游 Majorana 自旋子在缺陷处散射形成的量子干涉图样，并将其视为 Majorana 自旋子存在的原子级实空间直接证据^[105]；而我们与新加坡课题组分别基于界面电偶极子模型和关联电子-空穴晶体模型对非公度电荷序进行了解释，但均未排除其与 Majorana 自旋子存在内在关联的可能性。

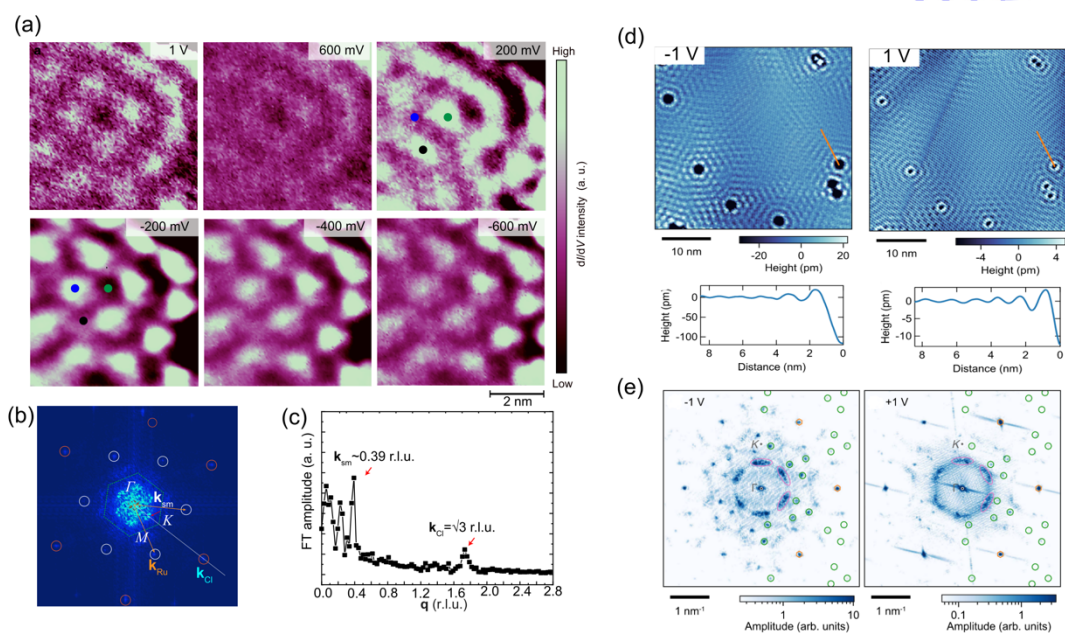


图 16. 剥离转移 α - RuCl_3 中的非公度电荷序: (a) 转移至石墨衬底上的双层 α - RuCl_3 在不同偏压下的 dI/dV 电导图; (b) STM 图像 FFT 图谱, 显示 α - RuCl_3 晶格的布拉格峰 (白色与红色圆圈), 以及第一布里渊区 (绿色虚线六边形) 内静态超调制对应的衍射峰; 其中 k_{Ru} 和 k_{Cl} 分别代表 Ru 亚晶格与 Cl 亚晶格的波矢, k_{sm} 为超调制波矢; (c) 沿 Γ -K 方向的线谱表明, k_{sm} 约为 0.39 倒格矢单位 (r.l.u.), 证实该超周期调制具有非公度特性。Reprinted from Ref.^[114]. 石墨衬底上生长的单层 α - RuCl_3 中的量子干涉: (d) 样品偏压分别为 -1 V (左) 与 +1 V 时测得的 α - RuCl_3 单层薄膜形貌图, 可清晰观察到缺陷周边的量子干涉条纹, 且干涉条纹的振幅从缺陷位置向外衰减; (e) STM 图像经 FFT 后, 呈现出量子相干条纹在动量空间的周期特性, 正负偏压下的调制周期存在差异性, 负偏压下的干涉条纹具有非公度特征。Reprinted from Ref.^[122].

Figure 16. Incommensurate charge order in exfoliated and transferred α - RuCl_3 : (a) dI/dV conductance maps of bilayer α - RuCl_3 transferred onto a graphite substrate at different bias voltages. (b) FFT pattern of the STM image, showing Bragg peaks of the α - RuCl_3 lattice (white and red circles) and diffraction peaks corresponding to static supermodulation within the first Brillouin zone (green dashed hexagon). Here, k_{Ru} and k_{Cl} denote the wave vectors of the Ru and Cl sublattices, respectively, and k_{sm} represents the supermodulation wave vector; (c) Line profile along the Γ -K direction shows that $k_{\text{sm}} \approx 0.39$ reciprocal lattice units (r.l.u.), confirming the incommensurate nature of the superperiodic modulation. Quantum interference in monolayer α - RuCl_3 grown on graphite substrates: (d) Topography maps of the α - RuCl_3 monolayer film measured at sample biases of -1 V (left) and +1 V (right). Quantum interference fringes around defects are clearly resolved, with amplitude decaying outward from the defect sites.

(e) FFT of the STM images reveals the momentum-space periodicity of the quantum coherent fringes. The modulation periods differ between positive and negative biases, and the interference fringes under negative bias exhibit incommensurate characteristics. *Reprinted from Ref.*^[122].

对于第二类非弹性电子隧穿机制，目前仍缺乏系统的实验报道与深入探究。在早期探索性实验中，我们已开展针尖-样品间距调控的隧穿谱测量：如图 17 所示，在单层 α - RuCl_3 /石墨样品表面，随着针尖不断逼近样品，隧穿谱从接近块体的大能隙特征，逐步演化为包含明显隙间态的窄能隙乃至近零能隙形态；在原本的 Mott 能隙范围内，可清晰观测到对应非弹性能量吸收的谱学特征，与能隙内低能自旋激发的非弹性隧穿行为高度吻合^[106]。我们认为，通过更精细的间距控制、更高分辨率的谱学成像以及变场/变温表征，基于第二类非弹性隧穿机制，有望直接实现对 Majorana 分数化激发态的可靠探测与原子尺度表征。

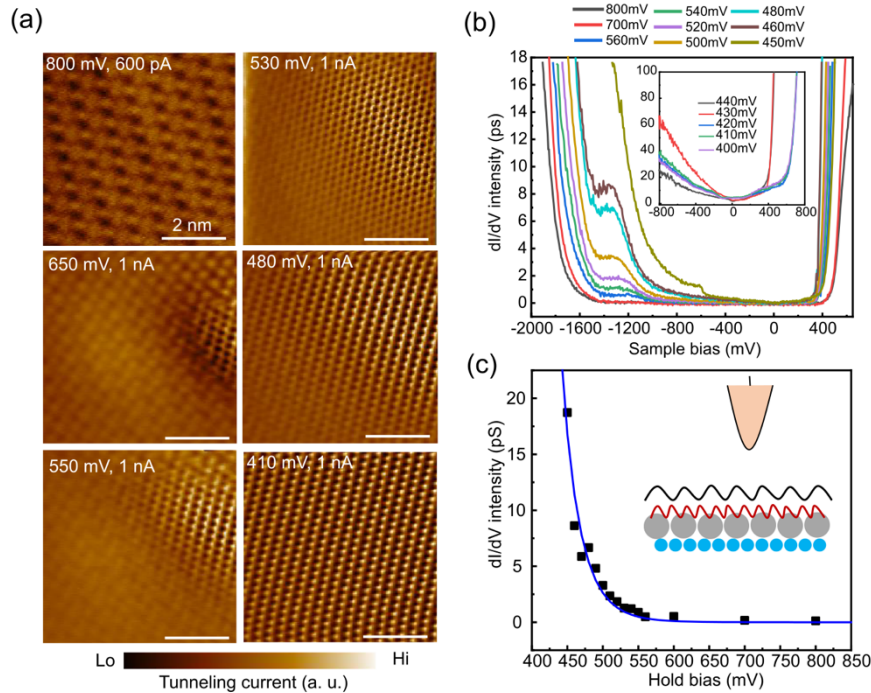


图 17. (a)在不同隧穿条件下（随着偏置电压降低，为维持恒定电流，针尖-样品距离减小）采集的单层 α - RuCl_3 的 STM 形貌，显示出晶格特征从 α - RuCl_3 本征结构逐步向类石墨晶格演化的过程，该演化始于晶格存在轻微畸变的区域；(b) 随着针尖高度不断降低测得的单层 α - RuCl_3 的 dI/dV 谱线 Mott 能隙中会逐渐出现隙内态并伴随出现特征峰；(c)同一能量下针尖-样品距离变化伴随着隧穿电子态强度的变化，可以看出在能隙中逐渐出现隙内态，表面能隙区域的电子隧穿。

Reprinted from Ref.^[106] with permission.

Figure 17. (a) STM topographies of monolayer α - RuCl_3 acquired under different tunneling conditions (with decreasing tip-sample distance as the bias voltage is reduced), showing a gradual evolution of lattice features from the intrinsic α - RuCl_3 structure toward a graphite-like lattice. This evolution initiates in regions with slight lattice distortion; (b) dI/dV spectra of monolayer α - RuCl_3 measured as the tip height is progressively lowered. In-gap states gradually emerge within the Mott gap, accompanied by the appearance of characteristic peaks; (c) At a fixed energy, varying the tip-sample distance leads to changes in the intensity of tunneling electronic states. The gradual emergence of in-gap states signals the onset of electron tunneling within the nominal gap region. *Reprinted from Ref.^[106] with permission.*

4. 总结与展望

以 Majorana 自旋子分数化激发、非阿贝尔任意子与非平庸拓扑序为核心特征的 Kitaev QSL，已经成为当前凝聚态物理领域的核心前沿方向，更是容错型拓扑量子计算最具潜力的物理载体之一^[124]。本文系统梳理了 Kitaev QSL 的理论起源、核心物理内涵与拓扑量子计算应用前景，聚焦于领域内最具代表性的候选体系— α - RuCl_3 ，全面阐述了其 Mott 绝缘态的电子结构起源、键依赖各向异性自

旋相互作用的本征特性，总结了中子散射、热霍尔效应等传统磁性材料表征手段的研究进展与长期存在的核心争议；在此基础上，重点阐释了基于 STM/STS 的电子隧穿谱技术在该体系中的独特优势，系统建立了自旋-电荷解耦-复合隧穿与低能非弹性隧穿两类核心机制的物理图像，结合本课题组在 α - RuCl_3 体相与少层薄膜的可控制备、Mott 能隙维度与温度演化规律、非公度电子态调制等方面的系列原创研究成果，厘清了该技术在分数化激发电学探测中的核心方法学基础与实验研究进展。

过去十余年，该领域在理论框架的完善与实验技术的突破上均取得了里程碑式的进展，不仅实现了 Kitaev 模型从理论“玩具模型”到真实材料体系的跨越，更建立了分数化激发电学探测的完整理论体系，为 QSL 的实验验证奠定了坚实的基础。但与此同时，领域内仍存在诸多亟待解决的核心科学挑战：不同表征手段下 α - RuCl_3 Mott 能隙测量值的巨大分歧尚未完全厘清，Majorana 分数化激发与传统磁振子、声子激发的排他性实验判据仍未建立，Kitaev 自旋相互作用与 Mott 能带结构的内在耦合机制、非公度电子态调制的微观物理本源等关键问题仍存在广泛争议，理想 Kitaev QSL 基态的确定性实验验证仍未实现。

面向未来，该领域的核心突破将围绕材料体系、表征技术、机制厘清与应用拓展四个核心方向协同推进。其一，需进一步发展高质量、低缺陷 α - RuCl_3 单层样品的生长技术与范德华异质结精准构建与 α - RuCl_3 物性调控技术，通过界面工程与维度调控精准抑制非 Kitaev 相互作用，最大限度贴合理想 Kitaev 蜂窝晶格模型的物理条件，为本征物性的探测提供纯净的实验平台；其二，需突破传统表征手段的探测瓶颈，基于 STM/STS 技术实现两类核心隧穿机制的精准可逆调控，发展极低温、强磁场下的自旋极化 STM 与高分辨准粒子干涉成像技术，建立

Majorana 自旋子、非阿贝尔任意子分数化激发的电子隧穿谱学指纹，为 Kitaev QSL 基态的确定性验证提供核心实验判据；其三，需进一步厘清 Kitaev 自旋相互作用对 Mott-Hubbard 能带结构的调控机制，明确 Mott 能隙温度演化与量子纠缠态演化的内在关联，揭示非公度电子态调制的微观物理本源，完善强关联体系中自旋-电荷分离与分数化激发的多体理论框架，深化对 QSL 新奇量子物态的本质认知；其四，在实现 Kitaev QSL 基态确定性验证的基础上，进一步探索非阿贝尔任意子的精准操控与量子编织技术，构建拓扑量子比特原型器件，为容错型拓扑量子计算的实用化发展奠定坚实的实验与理论基础。

总而言之，Kitaev QSL 的研究，既持续推动着人们对强关联量子物态的认知边界不断拓展，也为下一代量子计算技术的突破提供了全新的物理范式，未来随着材料制备、表征技术与多体量子理论的协同发展，该领域必将迎来更多里程碑式的原创突破^[125-126]。

参考文献

- [1] Broholm C, Cava R J, Kivelson S A, Nocera D G, Norman M R, Senthil T 2020 *Science* **367** eaay0668
- [2] Savary L, Balents L 2016 *Rep. Prog. Phys.* **80** 016502
- [3] Anderson P W 1973 *Mater. Res. Bull.* **8** 153
- [4] Anderson P W, Baskaran G, Zou Z, Hsu T 1987 *Phys. Rev. Lett.* **58** 2790
- [5] Zhou Y, Kanoda K, Ng T K 2017 *Rev. Mod. Phys.* **89** 025003
- [6] Anderson P W, Zou Z 1988 *Phys. Rev. Lett.* **60** 132
- [7] Kitaev A 2006 *Annals of Physics* **321** 2
- [8] Moore G, Read N 1991 *Nuclear Physics B* **360** 362
- [9] Jackeli G, Khaliullin G 2009 *Phys. Rev. Lett.* **102** 017205

- [10] Mazin I I, Jeschke H O, Foyevtsova K, Valentí R, Khomskii D I 2012 *Phys. Rev. Lett.* **109** 197201
- [11] Reuther J, Thomale R, Trebst S 2011 *Phys. Rev. B* **84** 100406
- [12] Rau J G, Lee E K H, Kee H Y 2014 *Phys. Rev. Lett.* **112** 077204
- [13] Chaloupka J, Jackeli G, Khaliullin G 2010 *Phys. Rev. Lett.* **105** 027204
- [14] Ye F 2012 *Phys. Rev. B* **85** 180403(R)
- [15] Plumb K W, Clancy J P, Sandilands L J, Shankar V V, Hu Y F, Burch K S, Kee H Y, Kim Y J 2014 *Phys. Rev. B* **90** 041112
- [16] Matsuda Y, Shibauchi T, Kee H Y 2025 *Rev. Mod. Phys.* **97** 045003
- [17] Sears J A, Songvilay M, Plumb K W, Clancy J P, Qiu Y, Zhao Y, Parshall D, Kim Y J 2015 *Phys. Rev. B* **91** 144420
- [18] Little A, Wu L, Lampen-Kelley P, Banerjee A, Patankar S, Rees D, Bridges C A, Yan J Q, Mandrus D, Nagler S E, Orenstein J 2017 *Phys. Rev. Lett.* **119** 227201
- [19] Banerjee A, Bridges C A, Yan J Q, Aczel A A, Li L, Stone M B, Granroth G E, Lumsden M D, Yiu Y, Knolle J, Bhattacharjee S, Kovrizhin D L, Moessner R, Tennant D A, Mandrus D G, Nagler S E 2016 *Nat. Mater.* **15** 733
- [20] Kim H S, Kee H Y 2016 *Phys. Rev. B* **93** 155143
- [21] Ran K, Wang J, Wang W, Dong Z Y, Ren X, Bao S, Li S, Ma Z, Gan Y, Zhang Y, Park J T, Deng G, Danilkin S, Yu S L, Li J X, Wen J 2017 *Phys. Rev. Lett.* **118** 107203
- [22] Wang W, Dong Z Y, Yu S L, Li J X 2017 *Phys. Rev. B* **96** 115103
- [23] Winter S M, Riedl K, Maksimov P A, Chernyshev A L, Honecker A, Valentí R 2017 *Nat. Commun.* **8** 1152
- [24] Sahasrabudhe A 2020 *Phys. Rev. B* **101** 140410(R)
- [25] Sears J A, Chern L E, Kim S, Beresniak P J, Francoual S, Kim Y B, Kim Y J 2020 *Nat. Phys.* **16** 837
- [26] Maksimov P A, Chernyshev A L 2020 *Phys. Rev. Res.* **2** 033011
- [27] Suzuki H, Liu H, Bertinshaw J, Ueda K, Kim H, Laha S, Weber D, Yang Z, Wang L, Takahashi H, Fürsich K, Minola M, Lotsch B V, Kim B J, Yavaş H,

- Daghofer M, Chaloupka J, Khaliullin G, Gretarsson H, Keimer B 2021 *Nat. Commun.* **12** 4512
- [28] Do S H, Park S Y, Yoshitake J, Nasu J, Motome Y, Kwon Y S, Adroja D T, Voneshen D J, Kim K, Jang T H, Park J H, Choi K Y, Ji S 2017 *Nat. Phys.* **13** 1079
- [29] Li H, Zhang H K, Wang J, Wu H Q, Gao Y, Qu D W, Liu Z X, Gong S S, Li W 2021 *Nat. Commun.* **12** 4007
- [30] Zhou X G, Li H, Matsuda Y H, Matsuo A, Li W, Kurita N, Su G, Kindo K, Tanaka H 2023 *Nat. Commun.* **14** 5613
- [31] Reschke S, Mayr F, Wang Z, Do S H, Choi K Y, Loidl A 2017 *Phys. Rev. B* **96** 165120
- [32] Mai T T, McCreary A, Lampen-Kelley P, Butch N, Simpson J R, Yan J Q, Nagler S E, Mandrus D, Walker A R H, Aguilar R V 2019 *Phys. Rev. B* **100** 134419
- [33] Banerjee A, Yan J, Knolle J, Bridges C A, Stone M B, Lumsden M D, Mandrus D G, Tennant D A, Moessner R, Nagler S E 2017 *Science* **356** 1055
- [34] Banerjee A, Lampen-Kelley P, Knolle J, Balz C, Aczel A A, Winn B, Liu Y, Pajerowski D, Yan J, Bridges C A, Savici A T, Chakoumakos B C, Lumsden M D, Tennant D A, Moessner R, Mandrus D G, Nagler S E 2018 *npj Quant Mater.* **3** 8
- [35] Knolle J, Kovrizhin D L, Chalker J T, Moessner R 2014 *Phys. Rev. Lett.* **112** 207203
- [36] Knolle J, Kovrizhin D L, Chalker J T, Moessner R 2015 *Phys. Rev. B* **92** 115127
- [37] Yoshitake J, Nasu J, Kato Y, Motome Y 2017 *Phys. Rev. B* **96** 024438
- [38] Yoshitake J, Nasu J, Motome Y 2017 *Phys. Rev. B* **96** 064433
- [39] Yoshitake J, Nasu J, Motome Y 2016 *Phys. Rev. Lett.* **117** 157203
- [40] Sandilands L J, Tian Y, Plumb K W, Kim Y J, Burch K S 2015 *Phys. Rev. Lett.* **114** 147201

- [41] Du L, Huang Y, Wang Y, Wang Q, Yang R, Tang J, Liao M, Shi D, Shi Y, Zhou X, Zhang Q, Zhang G 2018 *2D Mater.* **6** 015014
- [42] Wulferding D, Choi Y, Do S H, Lee C H, Lemmens P, Faugeras C, Gallais Y, Choi K Y 2020 *Nat. Commun.* **11** 1603
- [43] Lee J H, Choi Y, Do S H, Kim B H, Seong M J, Choi K Y 2021 *npj Quantum Mater.* **6** 43
- [44] Papawassiliou W, Lazaridis N, Mpanga E M, Koppe J, Panopoulos N, Karagianni M, Gkoura L, Berthelot R, Fardis M, Pell A J, Papavassiliou G 2024 arXiv:2407.14663[cond-mat.str-el]
- [45] Zheng J, Ran K, Li T, Wang J, Wang P, Liu B, Liu Z X, Normand B, Wen J, Yu W 2017 *Phys. Rev. Lett.* **119** 227208
- [46] Janša N, Zorko A, Gomilšek M, Pregelj M, Krämer K W, Biner D, Biffin A, Rüegg C, Klanjšek M 2018 *Nat. Phys.* **14** 786
- [47] Baek S H, Do S H, Choi K Y, Kwon Y S, Wolter A U B, Nishimoto S, van den Brink J, Büchner B 2017 *Phys. Rev. Lett.* **119** 037201
- [48] Leahy I A, Pocs C A, Siegfried P E, Graf D, Do S H, Choi K Y, Normand B, Lee M 2017 *Phys. Rev. Lett.* **118** 187203
- [49] Hirobe D, Sato M, Shiomi Y, Tanaka H, Saitoh E 2017 *Phys. Rev. B* **95** 241112
- [50] Czajka P, Gao T, Hirschberger M, Lampen-Kelley P, Banerjee A, Yan J, Mandrus D G, Nagler S E, Ong N P 2021 *Nat. Phys.* **17** 915
- [51] Hentrich R, Wolter A U B, Zotos X, Brenig W, Nowak D, Isaeva A, Doert T, Banerjee A, Lampen-Kelley P, Mandrus D G, Nagler S E, Sears J, Kim Y J, Büchner B, Hess C 2018 *Phys. Rev. Lett.* **120** 117204
- [52] Hentrich R, Roslova M, Isaeva A, Doert T, Brenig W, Büchner B, Hess C 2019 *Phys. Rev. B* **99** 085136
- [53] Nasu J, Yoshitake J, Motome Y 2017 *Phys. Rev. Lett.* **119** 127204
- [54] Kasahara Y, Sugii K, Ohnishi T, Shimozawa M, Yamashita M, Kurita N, Tanaka H, Nasu J, Motome Y, Shibauchi T, Matsuda Y 2018 *Phys. Rev. Lett.* **120** 217205

- [55] Kasahara Y, Ohnishi T, Mizukami Y, Tanaka O, Ma S, Sugii K, Kurita N, Tanaka H, Nasu J, Motome Y, Shibauchi T, Matsuda Y 2018 *Nature* **559** 227
- [56] Yokoi T, Ma S, Kasahara Y, Kasahara S, Shibauchi T, Kurita N, Tanaka H, Nasu J, Motome Y, Hickey C, Trebst S, Matsuda Y 2021 *Science* **373** 568
- [57] Kasahara Y, Suetsugu S, Asaba T, Kasahara S, Shibauchi T, Kurita N, Tanaka H, Matsuda Y 2022 *Phys. Rev. B* **106** L060410
- [58] Imamura K, Mizukami Y, Tanaka O, Grasset R, Konczykowski M, Kurita N, Tanaka H, Matsuda Y, Yamada M G, Hashimoto K, Shibauchi T 2024 *Phys. Rev. X* **14** 011045
- [59] Imamura K, Suetsugu S, Mizukami Y, Yoshida Y, Hashimoto K, Ohtsuka K, Kasahara Y, Kurita N, Tanaka H, Noh P, Nasu J, Moon E G, Matsuda Y, Shibauchi T 2024 *Sci. Adv.* **10** eadk3539
- [60] Bruin J A N, Claus R R, Matsumoto Y, Kurita N, Tanaka H, Takagi H 2022 *Nat. Phys.* **18** 401
- [61] Yu Y J, Xu Y, Ran K J, Ni J M, Huang Y Y, Wang J H, Wen J S, Li S Y 2018 *Phys. Rev. Lett.* **120** 067202
- [62] Lefrançois É, Grissonnanche G, Baglo J, Lampen-Kelley P, Yan J Q, Balz C, Mandrus D, Nagler S E, Kim S, Kim Y J, Doiron-Leyraud N, Taillefer L 2022 *Phys. Rev. X* **12** 021025
- [63] Lefrançois É, Baglo J, Barthélemy Q, Kim S, Kim Y J, Taillefer L 2023 *Phys. Rev. B* **107** 064408
- [64] Jin X B, Zhang X, Wan W B, Wang H R, Jiao Y H, Li S Y 2025 *Phys. Rev. Lett.* **135** 196302
- [65] Czajka P, Gao T, Hirschberger M, Lampen-Kelley P, Banerjee A, Quirk N, Mandrus D G, Nagler S E, Ong N P 2023 *Nat. Mater.* **22** 36
- [66] Shragai A, Horsley E, Kim S, Kim Y J, Ramshaw B J 2026 *Nature* **652** 1166
- [67] Zhang H, May A F, Miao H, Sales B C, Mandrus D G, Nagler S E, McGuire M A, Yan J 2023 *Phys. Rev. Mater.* **7** 114403
- [68] Namba R, Imamura K, Ishioka R, Ishihara K, Miyamoto T, Okamoto H, Shimizu Y, Saito Y, Agarmani Y, Lang M, Murayama H, Xing Y, Suetsugu S,

- Kasahara Y, Matsuda Y, Hashimoto K, Shibauchi T 2024 *Phys. Rev. Mater.* **8** 074404
- [69] Halász G B, Chalker J T, Moessner R 2014 *Phys. Rev. B* **90** 035145
- [70] Kao W H, Perkins N B, Halász G B 2024 *Phys. Rev. Lett.* **132** 136503
- [71] Jahin A, Zhang H, Halász G B, Lin S Z 2025 *Phys. Rev. Lett.* **134** 126501
- [72] Yang B, Goh Y M, Sung S H, Ye G, Biswas S, Kaib D A S, Dhakal R, Yan S, Li C, Jiang S, Chen F, Lei H, He R, Valentí R, Winter S M, Hovden R, Tsen A W 2023 *Nat. Mater.* **22** 50
- [73] Bauer T, Freitas L R D, Pereira R G, Egger R 2023 *Phys. Rev. B* **107** 054432
- [74] Takahashi M O, Yamada M G, Udagawa M, Mizushima T, Fujimoto S 2023 *Phys. Rev. Lett.* **131** 236701
- [75] Feldmeier J, Natori W, Knap M, Knolle J 2020 *Phys. Rev. B* **102** 134423
- [76] König E J, Randeria M T, Jäck B 2020 *Phys. Rev. Lett.* **125** 267206
- [77] Pereira R G, Egger R 2020 *Phys. Rev. Lett.* **125** 227202
- [78] Udagawa M, Takayoshi S, Oka T 2021 *Phys. Rev. Lett.* **126** 127201
- [79] Aasen D, Mong R S K, Hunt B M, Mandrus D, Alicea J 2020 *Phys. Rev. X* **10** 031014
- [80] Klocke K, Aasen D, Mong R S K, Demler E A, Alicea J 2021 *Phys. Rev. Lett.* **126** 177204
- [81] Timoshuk I, Tikhonov K, Makhlin Y 2023 *Sci. Rep.* **13** 15263
- [82] Klein D R, MacNeill D, Lado J L, Soriano D, Navarro-Moratalla E, Watanabe K, Taniguchi T, Manni S, Canfield P, Fernández-Rossier J, Jarillo-Herrero P 2018 *Science* **360** 1218
- [83] Ghazaryan D, Greenaway M T, Wang Z, Guarochico-Moreira V H, Vera-Marun I J, Yin J, Liao Y, Morozov S V, Kristanovski O, Lichtenstein A I, Katsnelson M I, Withers F, Mishchenko A, Eaves L, Geim A K, Novoselov K S, Misra A 2018 *Nat. Electron.* **1** 344
- [84] Carrega M, Vera-Marun I J, Principi A 2020 *Phys. Rev. B* **102** 085412
- [85] Peri V, Ilani S, Lee P A, Refael G 2024 *Phys. Rev. B* **109** 035127

- [86] Inbar A, Birkbeck J, Xiao J, Taniguchi T, Watanabe K, Yan B, Oreg Y, Stern A, Berg E, Ilani S 2023 *Nature* **614** 682
- [87] Kao W H, Halász G B, Perkins N B 2024 *Phys. Rev. B* **109** 125150
- [88] Shang-Shun Zhang, Halász G B, Batista C D 2025 *npj Quantum Mater.* **10** 59
- [89] Mross D F, Senthil T 2011 *Phys. Rev. B* **84** 041102
- [90] Ruan W, Chen Y, Tang S, Hwang J, Tsai H Z, Lee R L, Wu M, Ryu H, Kahn S, Liou F, Jia C, Aikawa A, Hwang C, Wang F, Choi Y, Louie S G, Lee P A, Shen Z X, Mo S K, Crommie M F 2021 *Nat. Phys.* **17** 1154
- [91] He W Y, Lee P A 2023 *Phys. Rev. B* **107** 195156
- [92] Chen Y, He W Y, Ruan W, Hwang J, Tang S, Lee R L, Wu M, Zhu T, Zhang C, Ryu H, Wang F, Louie S G, Shen Z X, Mo S K, Lee P A, Crommie M F 2022 *Nat. Phys.* **18** 1335
- [93] Zhang Q, He W Y, Zhang Y, Chen Y, Jia L, Hou Y, Ji H, Yang H, Zhang T, Liu L, Gao H J, Jung T A, Wang Y 2024 *Nat. Commun.* **15** 2336
- [94] Liu Z X, Normand B 2018 *Phys. Rev. Lett.* **120** 187201
- [95] Bauer T, Freitas L R D, Andrade E C, Egger R, Pereira R G 2024 *Phys. Rev. B* **110** L220403
- [96] Ziatdinov M, Banerjee A, Maksov A, Berljin T, Zhou W, Cao H B, Yan J Q, Bridges C A, Mandrus D G, Nagler S E, Baddorf A P, Kalinin S V 2016 *Nat. Commun.* **7** 13774
- [97] Jo M -K, Heo H, Lee J H, Choi S, Kim A, Jeong H B, Jeong H Y, Yuk J M, Eom D, Jahng J, Lee E S, Jung I -Y, Cho S R, Kim J, Cho S, Kang K, Song S 2021 *ACS Nano* **15** 18113
- [98] Zhou X, Li H, Waugh J A, Parham S, Kim H S, Sears J A, Gomes A, Kee H Y, Kim Y J, Dessau D S 2016 *Phys. Rev. B* **94** 161106
- [99] Wang Z, Liu L, Zhao M, Zheng H, Yang K, Wang C, Yang F, Wu H, Gao C 2022 *Quantum Front* **1** 16
- [100] Wang Z, Liu L, Zheng H, Zhao M, Yang K, Wang C, Yang F, Wu H, Gao C 2022 *Nanoscale* **14** 11745
- [101] Annaberdiyev A, Melton C A, Wang G, Mitas L 2022 *Phys. Rev. B* **106** 075127

- [102] Majumder M, Schmidt M, Rosner H, Tsirlin A A, Yasuoka H, Baenitz M 2015 *Phys. Rev. B* **91** 180401
- [103] Zhang Y, Lin L F, Moreo A, Dagotto E 2022 *Phys. Rev. B* **105** 085107
- [104] Koitzsch A, Habenicht C, Mueller E, Knupfer M, Buechner B, Kandpal H, van den Brink J, Nowak D, Isaeva A, Doert T 2016 *Phys. Rev. Lett.* **117** 126403
- [105] Sinn S, Kim C H, Kim B H, Lee K D, Won C J, Oh J S, Han M, Chang Y J, Hur N, Sato H, Park B G, Kim C, Kim H D, Noh T W 2016 *Sci. Rep.* **6** 39544
- [106] Zheng X, Jia K, Ren J, Yang C, Wu X, Shi Y, Tanigaki K, Du R R 2023 *Phys. Rev. B* **107** 195107
- [107] Biswas S, Li Y, Winter S M, Knolle J, Valentí R 2019 *Phys. Rev. Lett.* **123** 237201
- [108] Zhou B, Balgley J, Lampen-Kelley P, Yan J Q, Mandrus D G, Henriksen E A 2019 *Phys. Rev. B* **100** 165426
- [109] Rizzo D J, Jessen B S, Sun Z, Ruta F L, Zhang J, Yan J Q, Xian L, McLeod A S, Berkowitz M E, Watanabe K, Taniguchi T, Nagler S E, Mandrus D G, Rubio A, Fogler M M, Millis A J, Hone J C, Dean C R, Basov D N 2020 *Nano Lett.* **20** 8438
- [110] Rizzo D J, Shabani S, Jessen B S, Zhang J, McLeod A S, Rubio-Verdú C, Ruta F L, Cothrine M, Yan J, Mandrus D G, Nagler S E, Rubio A, Hone J C, Dean C R, Pasupathy A N, Basov D N 2022 *Nano Lett.* **22** 1946
- [111] Leeb V, Polyudov K, Mashhadi S, Biswas S, Valentí R, Burghard M, Knolle J 2021 *Phys. Rev. Lett.* **126** 097201
- [112] Jin H K, Knolle J 2021 *Phys. Rev. B* **104** 045140
- [113] Mashhadi S, Kim Y, Kim J, Weber D, Taniguchi T, Watanabe K, Park N, Lotsch B, Smet J H, Burghard M, Kern K 2019 *Nano Lett.* **19** 4659
- [114] Zheng X, Liu Z X, Zhang C, Zhou H, Yang C, Shi Y, Tanigaki K, Du R R 2024 *Nat. Commun.* **15** 7658
- [115] Zheng X, Takuma O, Zhou H, Yang C, Han X, Wang G, Ren J, Shi Y, Tanigaki K, Du R R 2024 *Phys. Rev. B* **109** 035106
- [116] Yue W, Zheng X, Yang C, Peng K, Du R R 2025 *Phys. Rev. Res.* **7** 043138

- [117] Mi X, Hou D, Wang X, Hammouda S, Liu C, Xiong Z, Li H, Liu Y, Wang G, Wang A, Chai Y, Qi Y, Li W, Zhou X, Su Y, Khomskii D I, He M, Sheng Z, Sun Y 2024 *Sci. China Phys. Mech. Astron.* **67** 297511
- [118] Zhang H, Kim S, Kim Y J, Kee H Y, Yang L 2024 *Phys. Rev. B* **110** L081111
- [119] Peng K, Zhang B, Yue W, Feng L, Li J, Yu R, Zheng X, Du R R 2026 *Chin. Phys. Lett* **43** 020702
- [120] Long Z, Wang J, Yang Y -F 2022 *Phys. Rev. B* **106** 195128
- [121] Sabharwal S, Gohlke M, Skrzypczyk P, Shannon N 2025 arXiv:2511.15144 [cond-mat.str-el]
- [122] Kohsaka Y, Akutagawa S, Omachi S, Iwamichi Y, Ono T, Tanaka I, Tateishi S, Murayama H, Suetsugu S, Hashimoto K, Shibauchi T, Takahashi M O, Nikolaev S, Mizushima T, Fujimoto S, Terashima T, Asaba T, Kasahara Y, Matsuda Y 2024 *Phys. Rev. X* **14** 041026
- [123] Qiu Z, Han Y, Noori K, Chen Z, Kashchenko M, Lin L, Olsen T, Li J, Fang H, Lyu P, Telychko M, Gu X, Adam S, Quek S Y, Rodin A, Castro Neto A H, Novoselov K S, Lu J 2024 *Nat. Mater.* **23** 1055
- [124] 顾昭龙, 李建新 2024 物理学报 **73** 070301
- [125] 冉柯静, 王靖琿, 温锦生 2021 物理 **50** 443
- [126] Yang L(杨露), Zhang J-X(张佳星), Liang S(梁爽), Chen W(陈薇), and Wang Q-H(王强华) 2021 *Chin. Phys. B* **30** 117504

Research Progress on Mott Properties and Electronic Tunneling

Spectroscopy of Kitaev Spin Liquid Material α -RuCl₃

FENG Lei^{1,2}, GAO Lei², and ZHENG Xiaohu^{1,3}

¹Beijing Academy of Quantum Information Sciences, Beijing 100193, China.

²Corrosion and Protection Center, Institute for Advanced Materials and Technology, University of Science and Technology Beijing, Beijing 100083, China.

³State Key Laboratory of Materials for Integrated Circuits, Shanghai Institute of Microsystem and Information Technology, Chinese Academy of Sciences, 865

Changning Road, Shanghai 200050 China.

Abstract

Quantum spin liquids represent novel quantum states in strongly correlated systems that transcend conventional magnetic order. Kitaev quantum spin liquids have emerged as a central platform for topological quantum computation due to their exact solvability, topological order, and non-Abelian Majorana spinon excitations. This paper systematically reviews recent advances in Mott physics and electronic tunneling spectroscopy of Majorana spinons in Kitaev quantum spin liquids. We first introduce the differences between Kitaev quantum spin liquids and geometrically frustrated quantum spin liquids, as well as their topological properties and fractionalized excitation mechanisms, and highlight α -RuCl₃ as the most promising experimental candidate, which hosts a quasi-two-dimensional honeycomb lattice, strong spin-orbit coupling, and Mott insulating behavior. Signatures consistent with fractionalized excitations have been observed via inelastic neutron scattering, Raman spectroscopy, thermal Hall effect and other techniques, yet key issues such as the physical origin of magnetic excitations and

the mechanism of quantized thermal conductivity remain under debate. We then focus on the unique capability of electronic tunneling spectroscopy, particularly scanning tunneling microscopy/spectroscopy for detecting Majorana spinons. We review two dominant tunneling mechanisms—inelastic tunneling and spin–charge separation–recombination—and summarize important experimental findings including the temperature and dimensional dependence of the Mott gap in α - RuCl_3 , as well as the modulation of incommensurate electronic states in thin-film samples. Finally, we discuss current bottlenecks such as material defects, tunneling signal-to-noise ratio, and spectral interpretation, and outlook future directions toward obtaining direct spectroscopic evidence of Majorana excitations *via* high-quality thin-film growth, multi-external-field tuning, and high-resolution tunneling characterization. This review aims to provide a foundation for the experimental verification of Kitaev quantum spin liquids and their applications in topological quantum science.

Key words: Kitaev quantum spin liquid; Majorana spinon; Electron tunneling; Mott insulator

Acknowledgement: Innovation Program for Quantum Science and Technology (2023ZD0300500); Open Project of State Key Laboratory of Integrated Circuit Materials (SKLJC-K2025-05)