

专题: 量子磁性

稀土三角晶格自旋系统中的量子自旋液体基态*

谢铭泰¹⁾²⁾ 张政^{1)†} 张清明¹⁾²⁾

1) (中国科学院物理研究所, 北京凝聚态物理国家研究中心, 北京 100190)

2) (兰州大学物理科学与技术学院, 兰州 730000)

(2026 年 4 月 20 日收到; 2026 年 5 月 18 日收到修改稿)

量子自旋液体是阻挫磁体中一种在零温极限下仍不发生常规磁有序的量子多体态, 其主要特征包括长程量子纠缠、分数化激发和涌现规范结构. 三角晶格是研究量子自旋液体的经典平台, 但长期理论与实验研究表明, 最简单的自旋 1/2 最近邻 Heisenberg 三角晶格模型的基态并非自旋液体, 而是 120° Néel 有序态. 因此, 真实材料中三角晶格量子自旋液体的实现通常依赖次近邻交换、XXZ 各向异性以及强自旋-轨道耦合诱导的各向异性交换等机制. 本文综述稀土三角晶格量子自旋液体的理论基础、候选材料与实验进展. 在众多稀土 Kramers 离子中, Yb^{3+} 基化合物因其有效赝自旋 1/2 描述的简洁性以及高质量单晶样品的可获得性, 成为目前实验进展最为充分的体系, 也是本文的讨论重点. 围绕 Yb 基三角晶格材料, 本文重点讨论 YbMgGaO_4 体系中的无序争议, 以及 NaYbCh_2 ($\text{Ch} = \text{O}, \text{S}, \text{Se}$) 家族在结构完整性和低能激发性质方面展现出的优势, 并结合 KYbO_2 , KYbSe_2 和 CsYbSe_2 等有序同系物对有效哈密顿量的定量约束进行比较. 现有研究表明, NaYbCh_2 家族是当前最具前景的稀土三角晶格量子自旋液体候选平台之一.

关键词: 量子自旋液体, 三角晶格, 稀土磁体**DOI:** 10.7498/aps.75.20260552**CSTR:** 32037.14.aps.75.20260552

1 引言

量子自旋液体是这样一类物态: 在具有阻挫的反铁磁体中, 磁矩一直到绝对零度仍保持动态无序, 体系不发生常规对称性破缺, 而是形成由长程量子纠缠支撑的基态, 并伴随涌现规范场以及携带分数量子数的激发. Anderson^[1] 于 1973 年首先在二维自旋 1/2 三角晶格反铁磁体的语境下提出以下概念: 由于最近邻反铁磁交换与三角几何之间的不可兼容性, 每个基本三角形上的三支自旋无法同时两两反平行, 因此量子涨落有可能彻底阻止磁有序并稳定一种由涨落单态对构成的“共振价键”态. 之后, 高温超导的发现又赋予这一设想新的意义,

Anderson^[2] 提出对自旋液体进行掺杂可能实现非常规超导体. 时至今日, 量子自旋液体不仅是研究二维分数化与涌现规范结构的理想平台, 也被视为潜在的拓扑量子信息载体^[3].

然而, 半个世纪过去, Anderson 设想的三角晶格自旋液体在真实材料中的实现, 其实际难度远高于该问题表面呈现出的程度. 首先, 纯粹的自旋 1/2 最近邻 Heisenberg 三角晶格模型实际上并不支持自旋液体基态; 自 1990 年以来的数值研究已经明确表明, 其零温基态是 120° Néel 有序态^[4], 相应子晶格磁矩虽被量子涨落显著压低, 但仍然有限^[5]. 因此, 要在真实三角晶格材料中实现自旋液体, 必须引入能破坏 120° 有序、但又不会简单地被另一种常规有序所替代的额外相互作用, 例如适中的次

* 国家重点研发计划 (批准号: 2022YFA1402700, 2024YFA1408300)、国家自然科学基金 (批准号: 12274186)、综合极端条件实验装置用户项目 (SECUF, <https://cstr.cn/31123.02.SECUF>) 和兰州市高层次人才基金资助的课题.

† 通信作者. E-mail: zhangzheng@iphy.ac.cn

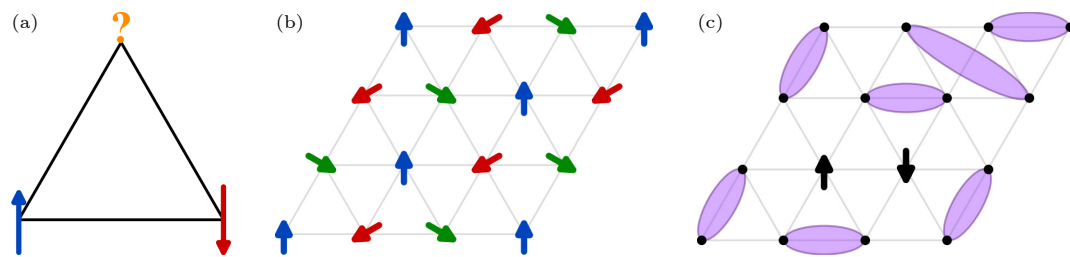


图1 三角晶格量子磁性的三种基本图像示意 (a) 三角晶格中的几何阻挫, 对于最近邻反铁磁相互作用, 三个自旋无法在同一基本三角形上同时满足所有成键能量最低条件; (b) 经典自旋极限下的 120° 三子晶格有序态; (c) 三角晶格上的价键与自旋子示意. 紫色椭圆表示两个自旋形成的单态价键对, 其中包含最近邻与更远程的配对; 两个未配对的自旋 (黑色箭头) 即为自旋子, 一种典型的分数化激发. Anderson 提出的共振价键态可理解为大量此类价键构型的量子叠加, 图中仅展示了其中一种具体构型及其所承载的自旋子激发

Fig. 1. Schematic illustrations of three fundamental pictures of triangular-lattice quantum magnetism: (a) Geometrical frustration on the triangular lattice, for nearest-neighbor antiferromagnetic interactions, three spins cannot simultaneously minimize the energy of all bonds on a single elementary triangle; (b) the 120° three-sublattice ordered state in the classical-spin limit; (c) schematic of valence bonds and spinons on the triangular lattice. Purple ellipses denote singlet valence-bond pairs formed by two spins, including both nearest-neighbor and longer-range pairings; the two unpaired spins (black arrows) are spinons—a prototypical fractionalized excitation. Anderson's resonating valence bond (RVB) state can be understood as a quantum superposition of a large number of such valence-bond configurations; the figure shows only one specific configuration and the spinon excitations it hosts.

近邻交换^[6]、易面 XXZ 各向异性^[7], 或强自旋-轨道耦合诱导的键依赖自旋各向异性交换^[8].

其次, 结构上完美的三角晶格反铁磁体并不常见. 许多无机候选材料存在空间各向异性, 导致三角晶格扭曲^[9,10]; 另一些体系中存在反对称的 Dzyaloshinskii-Moriya 相互作用, 会削弱几何阻挫^[11,12]; 还有一些材料则受到化学无序的困扰, 磁性离子与非磁性离子的混位或非磁性层中的电荷无序会直接污染局域晶场与交换路径^[13–15]. 即使某些材料在结构上已经相当理想, 量子自旋液体的实验识别仍然十分困难. 其原因在于, 这类体系最先呈现出来的往往只是一些常规信号的缺失, 例如没有长程磁有序、没有自旋冻结、也没有典型的磁化平台. 然而, 仅凭这些现象还不足以确认量子自旋液体, 因为强涨落的无序磁态, 甚至由无序诱导形成的随机单态态, 也可能表现出相似特征^[15]. 要真正区分这些情况, 还需要进一步获得关于分数化激发、多体纠缠或涌现规范结构的直接证据, 而这恰恰是当前实验研究中最困难的部分之一^[16,17].

在这一背景下, 过去十年中研究焦点逐渐转向稀土三角晶格反铁磁体^[17–19]. 原因主要有三点. 其一, 在足够低局域对称性的晶体场中, Yb^{3+} ($4f^3$) 离子的基态 Kramers 双重态在低于第一激发晶场能级 (通常为几十 meV) 的温区内可有效等价于自旋 $1/2$ ^[20]. 其二, 稀土 $4f$ 电子强自旋-轨道耦合会自动生成理论上已知有利于破坏简单 120° 有序的自旋各向异性和键依赖相互作用^[21,22]. 其三, 也是材

料上最关键的一点, 近年来已经发现若干层状 Yb 基氧化物和硫属化物家族, 其中 Yb^{3+} 离子构成几乎完美的三角晶格, 最近邻上不存在 Dzyaloshinskii-Moriya 相互作用, 而在最洁净的体系中甚至不存在磁性子晶格上的化学无序^[19,21,23,24]. 尽管上述物理考量原则上适用于多种具有 Kramers 双重态的稀土离子, 但迄今为止实验进展最为系统深入的是 Yb^{3+} 基化合物, 本文也因此以 Yb 基体系为核心展开讨论. 2015 年报道的 YbMgGaO_4 开启了这一方向的现代研究阶段^[21,23], 而随后出现的稀土族硫化物家族 AYbCh_2 (A 为碱金属, $\text{Ch} = \text{O}, \text{S}, \text{Se}$) 则进一步给出了迄今最受瞩目的三角晶格量子自旋液体实验平台^[19,24].

需要强调的是, 稀土三角晶格体系的重要性, 不仅在于提供了若干新的候选材料, 更在于它们把三角晶格量子自旋液体研究从早期寻找磁无序的阶段, 推进到围绕具体哈密顿量、材料家族与实验判据展开系统比较的阶段. 一方面, YbMgGaO_4 家族率先展示了宽连续体激发、持续自旋动力学等一系列与分数化图景高度相关的实验特征^[25–31], 同时也使人们逐渐认识到化学无序可能产生类似自旋液体的实验响应, 从而给实验判定带来了新的困难^[13–15,32,33]; 另一方面, NaYbCh_2 家族及其 K/Cs 同系物又构成了一类可沿化学压力与交换竞争连续调控的材料体系, 使零场磁无序体系与磁有序参照体系之间首次能够建立较可靠的联系^[19,24]. 正因如此, 当前关于稀土三角晶格量子自旋液体的讨

论, 已经不再局限于是否存在候选材料, 而是进一步转向: 哪些材料更具有完美且可靠的三角结构, 描述这些材料的低能自旋哈密顿量是什么, 实验上究竟应如何区分不同的量子无序图像等更深层的问题.

基于上述背景, 本文围绕稀土三角晶格自旋系统中的量子自旋液体基态问题展开综述. 首先, 从三角晶格量子磁性的若干基本理论模型出发, 讨论最近邻 Heisenberg 模型、XXZ 模型、 J_1 - J_2 模型以及强自旋-轨道耦合条件下的各向异性交换模型, 说明三角晶格中量子无序窗口究竟是如何被打开的. 随后, 重点评述近年来最重要的稀土三角晶格候选材料, 尤其是 YbMgGaO_4 家族、 NaYbCh_2 家族及其 K/Cs 同系物, 比较不同体系在晶体结构、低能自旋哈密顿量、谱学响应与外场调控方面的异同. 最后, 结合当前实验与理论进展, 讨论这一领域仍然存在的若干关键开放问题, 包括如何建立更有说服力的正判据来识别量子自旋液体、如何区分不同类型的量子无序基态, 以及如何借助化学调控、压力与多种探测手段联合测量, 进一步推动稀土三角晶格量子自旋液体研究走向可定量、可检验的阶段.

2 三角晶格量子磁性的理论基础

2.1 Heisenberg 模型: 最基本的出发点

三角晶格量子磁性的三种基本图像如图 1 所示. 描述三角晶格本征几何阻挫最简单的理论模型, 是各向同性最近邻 Heisenberg 反铁磁模型:

$$\mathcal{H} = J \sum_{\langle i,j \rangle} \mathbf{S}_i \cdot \mathbf{S}_j, \quad (1)$$

其中 $J > 0$ 表示反铁磁交换作用. 对于二分格子, 该哈密顿量通常对应共线 Néel 有序; 但在三角晶格上, 每个基本三角形上的三条反铁磁键不可能同时达到各自的最低能量, 从而形成最基本的几何阻挫. 作为该问题的经典范例, Wannier^[34] 早在 1950 年就指出, 三角晶格 Ising 反铁磁体在零温下不发生长程有序, 并保留有限的剩余熵.

对于 Heisenberg 自旋, 经典基态为著名的 120° 三子晶格共面排布: 三个子晶格上的自旋位于同一平面内, 两两之间相差 120° , 其有序波矢位于布里渊区 K 点. Anderson^[1] 在 1973 年曾提出, 自旋 $1/2$ 体系中的量子涨落可能足以熔化这种经典磁序, 从

而稳定共振价键型量子自旋液体. 后续数值研究表明, 三角晶格最近邻自旋 $1/2$ Heisenberg 反铁磁体在零温下仍保持长程 120° 磁有序, 但其子晶格磁矩显著低于经典值, 相较于经典值降低约 59%^[5,35]. 这表明该体系中的量子涨落极强, 经典有序与量子无序之间的竞争已十分显著.

这种强量子涨落的特征在激发谱中表现得尤为鲜明. 线性自旋波理论预言, 其单磁振子谱在 Γ 点及与磁有序相关的等价波矢处具有 Goldstone 模, 并在 M 点附近达到较高能量; 进一步的 $1/S$ 修正和级数展开则表明, 高能区磁振子色散会发生显著重整化, 并在 M 点附近形成旋子型局域极小^[36,37]. 与方格子最近邻 Heisenberg 反铁磁体相比, 这类异常在三角晶格中更为突出, 是强量子涨落的重要体现. 与此同时, 由于 120° 磁序属于非共线有序, 在局域坐标系下进行自旋波展开时, 哈密顿量中会自然出现三次玻色子项. 由此, 在满足能量和动量守恒的区域内, 单个磁振子可以在零温下衰变为两个磁振子, 进而表现为有限寿命、偏离简单 Lorentzian 形式的线形以及明显的连续激发谱权重转移^[37,38]. 对实验而言, 这意味着即使材料的基态是常规磁有序态, 其非弹性中子散射 (inelastic neutron scattering, INS) 谱中仍可能同时出现相对尖锐的低能磁振子支和宽广的高能连续体激发. 因此, 不能仅凭连续体激发的存在便将体系判定为量子自旋液体.

在外加磁场下, 该模型还展示出“序由无序 (order-by-disorder)”的典型行为. 对于经典三子晶格构型, 在一定磁场范围内存在一族偶然简并的基态. 热涨落和量子涨落会从中选择出若干特定相, 其中最著名的是位于饱和磁化 $1/3$ 处的“上-上-下”共线态, 对应于著名的 $1/3$ 磁化平台^[39,40]. $\text{Ba}_3\text{CoSb}_2\text{O}_9$ 通常被视为这一物理图像的近似实验实现之一^[40-42], 其磁化平台行为和低能激发与自旋 $1/2$ 三角晶格 Heisenberg 反铁磁体的理论预言总体一致.

2.2 XXZ 模型: 交换各向异性

在 Heisenberg 模型基础上, 最直接的推广是允许纵向耦合与横向耦合不同, 即 XXZ 自旋哈密顿量:

$$\mathcal{H}_{\text{XXZ}} = J \sum_{\langle i,j \rangle} [S_i^x S_j^x + S_i^y S_j^y + \Delta S_i^z S_j^z]. \quad (2)$$

其中, $\Delta = 1$ 对应各向同性 Heisenberg 极限, $\Delta < 1$ 对应易面各向异性, $\Delta > 1$ 对应易轴各向异性. 对于许多实际稀土材料, 局域晶场常使其低能有效双重态呈现明显的易面或易轴特征^[20], 因此 Δ 往往是刻画低能磁性的关键参数之一^[8].

在三角晶格自旋 1/2 XXZ 反铁磁体中, 易面各向异性会对基态选择和激发谱产生直接影响^[43]. 其一, K 点附近的磁振子能隙会按 $\sqrt{1-\Delta}$ 缩放, 因此有序态激发谱会出现随偏离 Heisenberg 极限而连续增长的小能隙. 其二, 系统的对称性破缺格局更加丰富: 除了 120° 构型的离散手征性外, 哈密顿量所保留的平面内 $U(1)$ 对称性也会在有序转变处破缺, 从而改变有序参量及其临界行为. 在外加磁场下, 易面各向异性通常会拓宽并稳定“上-上-下”平台, 因为这种共线态最能顺应易面几何. Yamamoto 等^[7] 的量子相图研究还指出, 量子涨落会把经典连续简并相打散成由一级相变分隔的多个区域, 并打开一个经典模型中并不存在的新共面相窗口.

在真实材料中, 严格二维模型往往还需考虑小但非零的层间耦合 J' , 因为它通常是建立三维有限温长程磁有序的重要条件. $\text{Ba}_3\text{CoSb}_2\text{O}_9$ ^[40-42] 与 $\text{Ba}_2\text{La}_2\text{CoTe}_2\text{O}_{12}$ ^[44,45] 等体系为 XXZ 模型提供了重要的实验参照: 前者通常被认为接近各向同性极限, 而后者则表现出更强的易面各向异性, 并呈现出更显著的连续体激发. 对于本文关注的稀土三角晶格材料, XXZ 图像本身通常仍不充分, 因为强自旋-轨道耦合会进一步诱导键依赖的各向异性交换^[8,22]. 但作为理解场诱导“上-上-下”平台、低能磁振子结构以及交换各向异性效应等物理现象的基本模型, XXZ 模型仍然不可或缺.

2.3 J_1 - J_2 模型: 次近邻交换与自旋液体窗口

第二类重要推广是允许超出最近邻的交换作用. 在三角晶格上, 次近邻键连接相距 $\sqrt{3}a$ 的格点, 其连线自身也构成一个相对原晶格旋转 30° 、晶格常数为 $\sqrt{3}a$ 的三角网络. 相应的哈密顿量可写为

$$\mathcal{H} = J_1 \sum_{\langle i,j \rangle} \mathbf{S}_i \cdot \mathbf{S}_j + J_2 \sum_{\langle\langle i,j \rangle\rangle} \mathbf{S}_i \cdot \mathbf{S}_j, \quad (3)$$

其中 J_1 和 J_2 均取反铁磁耦合. 经典极限下, 当 J_2/J_1 较小时, 基态为 120° 磁有序; 当 J_2/J_1 增大到足够大时, 基态则转变为四子晶格条纹相, 两者之间对应一阶相变^[46,47].

然而对于自旋 1/2 体系, 量子涨落会显著重塑这一图景. 2015 年两项大规模密度矩阵重整化群 (density matrix renormalization group, DMRG) 研究分别表明, 120° 有序大致只稳定到 $J_2/J_1 \approx 0.06$, 而条纹相则在 $J_2/J_1 \gtrsim 0.17$ 附近才重新出现^[48,49], 因此中间形成了一个无磁长程序窗口. 该窗口的基态性质至今仍存在争论^[50,51]. 现有讨论主要有三类候选: 一是具有拓扑序且全能隙的 $\mathbb{Z}_2$ 自旋液体; 二是无能隙的 $U(1)$ Dirac 自旋液体^[52]; 三是具有有限自旋子费米面的 $U(1)$ 自旋液体^[53]. 不同候选态在低温热力学量、动力学结构因子以及对弱微扰的响应方面有不同的理论预言, 因此, 若能在实验中找到落入该窗口附近的真实体系, 将为区分这些方案提供重要平台.

对于 Yb 基稀土三角晶格体系, 这一 J_1 - J_2 竞争图像在近几年获得了更直接的实验关联. Scheie 等^[54,55] 通过对 KYbSe_2 与 NaYbSe_2 的高分辨 INS 数据进行分析, 提取了相应的低能交换参数, 并指出这两类材料均处于接近量子无序边界的参数区域. 需要强调的是, 这些真实材料的微观哈密顿量通常并非严格的各向同性 J_1 - J_2 模型, 而是包含明显的各向异性交换. 因此, 此处的 J_1 - J_2 图像更适合作为理解其有序-无序竞争趋势的一种有效参照. 后文在讨论 AYbCh_2 家族时将多次回到这一框架.

2.4 稀土 Kramers 双重态与四参数各向异性交换模型

对于处于三方晶场环境中的 Yb^{3+} , 自旋-轨道耦合的能标 (几十到数百毫电子伏特) 通常远大于离子间交换作用 (毫电子伏特量级), 因此其局域 4f 电子自由度首先形成总角动量 $J = 7/2$ 多重态, 随后再被晶体场劈裂为四个 Kramers 双重态. 在远低于第一激发双重态的温区内, 局域磁自由度可以等效表示为作用在最低双重态上的有效赝自旋 1/2.

这一低能映射的直接后果是: 赝自旋之间的交换不再继承原始交换的自旋旋转对称性, 而是严格受到局域晶场与点群对称性的约束. 对于具有 D_{3d} 位点对称性的稀土三角晶格, 最近邻赝自旋双线性交换一般包含四个独立参数: J_{zz} , $J_{\pm}$, $J_{\pm\pm}$ 与 $J_{z\pm}$ ^[8]. 其中, J_{zz} 对应 Ising 型纵向交换, $J_{\pm}$ 对应对称横向交换; $J_{\pm\pm}$ 和 $J_{z\pm}$ 则是由强自旋-轨道耦合诱导的键依赖各向异性交换, 在 Heisenberg 或 XXZ 模

型中均不存在, 并伴随沿三种键方向取不同取值的相位因子 γ_{ij} 与 ζ_{ij} . 这些项本质上把自旋方向与键方向锁定在一起, 显著降低哈密顿量的连续对称性, 并增强量子涨落.

这一模型的基态相图已经通过 DMRG、精确对角化、自旋波理论以及变分方法得到广泛研究 [8,22,56,57]. 总体而言, 除与 Heisenberg 极限连续相连的 120° 有序相外, 还可出现不同取向的条纹有序相; 在某些参数区域, 较强的键依赖各向异性交换还可能压制磁长程序, 并稳定自旋液体或近自旋液体态 [22,57]. 对实验分析而言, 需要特别注意两点. 其一, 由于最小模型本身已包含四个独立参数, 不同实验又往往只对其中某些参数组合更为敏感, 因此单一实验通常不足以唯一确定哈密顿量, 必须结合 INS、电子自旋共振 (electron spin resonance, ESR)、单晶磁化与热力学测量等多种信息进行联合约束 [58–60]. 其二, 若材料内部存在显著化学无序, 则这些交换参数会在键与键之间发生涨落, 此时问题便从各向异性交换模型转向存在电荷无序的各向异性交换模型. YbMgGaO₄ 中的持续争议, 很大程度上正围绕这种无序效应与本征量子自旋液体响应之间的区分展开 [13,14,32,33].

3 稀土化合物中的三角晶格量子自旋液体候选者

3.1 YbMgGaO₄ 家族: 开创性研究与无序争议

2015 年, Li 等 [21,23] 首次报道了层状稀土氧化物 YbMgGaO₄ (图 2(a), (b)), 并迅速将其推到三角晶格量子自旋液体研究的中心位置. 该材料属于 $R\bar{3}m$ 空间群, Yb³⁺ 在 ab 面内形成近乎理想的等边三角晶格. 由于层间距较大, 层间交换远弱于面内交换. 同时, 每个 Yb 位点及 Yb—Yb 键中心均具有反演对称性, 因此最近邻乃至更远邻的 Dzyaloshinskii-Moriya 相互作用都被禁止. 从晶体结构上看, 它是最接近理想 Yb 基三角晶格模型体系的材料之一. 热力学测量给出的图像同样极具吸引力: Curie-Weiss 温度约为 -4 K, 表明体系中存在数 K 量级的反铁磁交换; 而无论粉末还是单晶样品, 在约 60 mK 的温区都未发现长程磁有序或自旋冻结迹象, 磁比热在低温下呈现近似幂律行为 ($C_m \propto T^{0.7}$) [21,23]. 随后, 单晶磁转矩与 ESR 研

究进一步表明, Yb³⁺ 的低能有效自旋 $1/2$ 并非简单的 Heisenberg 型, 而是受到显著各向异性交换的控制 [61,62].

围绕 YbMgGaO₄ 的一个关键进展, 是以四参数各向异性交换模型为基础对其哈密顿量进行定量提取. 代表性的高场 THz 谱、ESR 与中子散射联合分析表明, 该体系整体上处于易面交换主导的参数区域: $J_\pm$ 占主导, J_{zz} 次之, 同时还包含不可忽略的次近邻交换 J_2 以及较弱但非零的 $J_{\pm\pm}$ 和 $J_{z\pm}$ 项 [61]. 换言之, YbMgGaO₄ 常被概括为一种“易面 XXZ+次近邻 J_2 +较弱 SOC 驱动的非对角各向异性”的稀土三角晶格体系. 这种参数层级一度使其看起来像是处在量子自旋液体相附近, 从而成为最受关注的候选材料之一.

最具影响力的一类实验来自单晶 INS 实验. Shen 等在整个二维布里渊区内观测到连续的动力学结构因子: 谱函数在能量上呈宽广连续体激发, 而非清晰的单磁振子色散; 同时连续体激发还表现出一个随动量而变的锐利高能边界, 与二维自旋子费米面粒子-空穴激发的预期高度相似 [25–27]. 结合低温磁比热中近似 $T^{2/3}$ 或 T 线性的行为 [21,23], 这些结果使 YbMgGaO₄ 成为“ $U(1)$ 自旋子费米面自旋液体”的代表材料. 随后, μ 子自旋弛豫 (muon spin relaxation, μ SR)、场依赖 INS 以及低能三轴中子实验又从不同侧面强化了这一图像: 零场下存在持续自旋动力学, 外场下连续体激发围绕 Zeeman 分裂的自旋子带发生重组, 而最低能区的谱权重演化还可与近邻价键重排联系起来 [28–31] (图 3).

与此同时, 围绕无序效应的另一种解释也逐步发展起来. 问题的根源在于: 尽管 Yb³⁺ 本身并不与 Mg²⁺ 或 Ga³⁺ 发生混位, 但非磁性层中的 Mg 与 Ga 是无序混排的, 且两者价态不同, 因此会在每个 Yb 位点附近引入不均匀的静电环境. 随后, 对晶场激发的中子散射实验清楚表明 (图 2(c)–(f)), Yb³⁺ 从基态双重态到三个激发双重态的跃迁均出现显著展宽, 并明显超出仪器分辨, 说明局域晶场参数并非单一固定值, 而是存在宽分布 [13]. 由此自然推断, g 因子与交换耦合也会相应分布. 超低温热导实验则进一步发现, 尽管磁比热贡献显著, 磁激发对热输运却几乎没有可分辨的贡献 [64]. 这一结果对可移动的、自旋子型低能载流子图像构成了严峻挑战.

理论上, Zhu 等 [14]、Kimchi 等 [15]、Parker 和

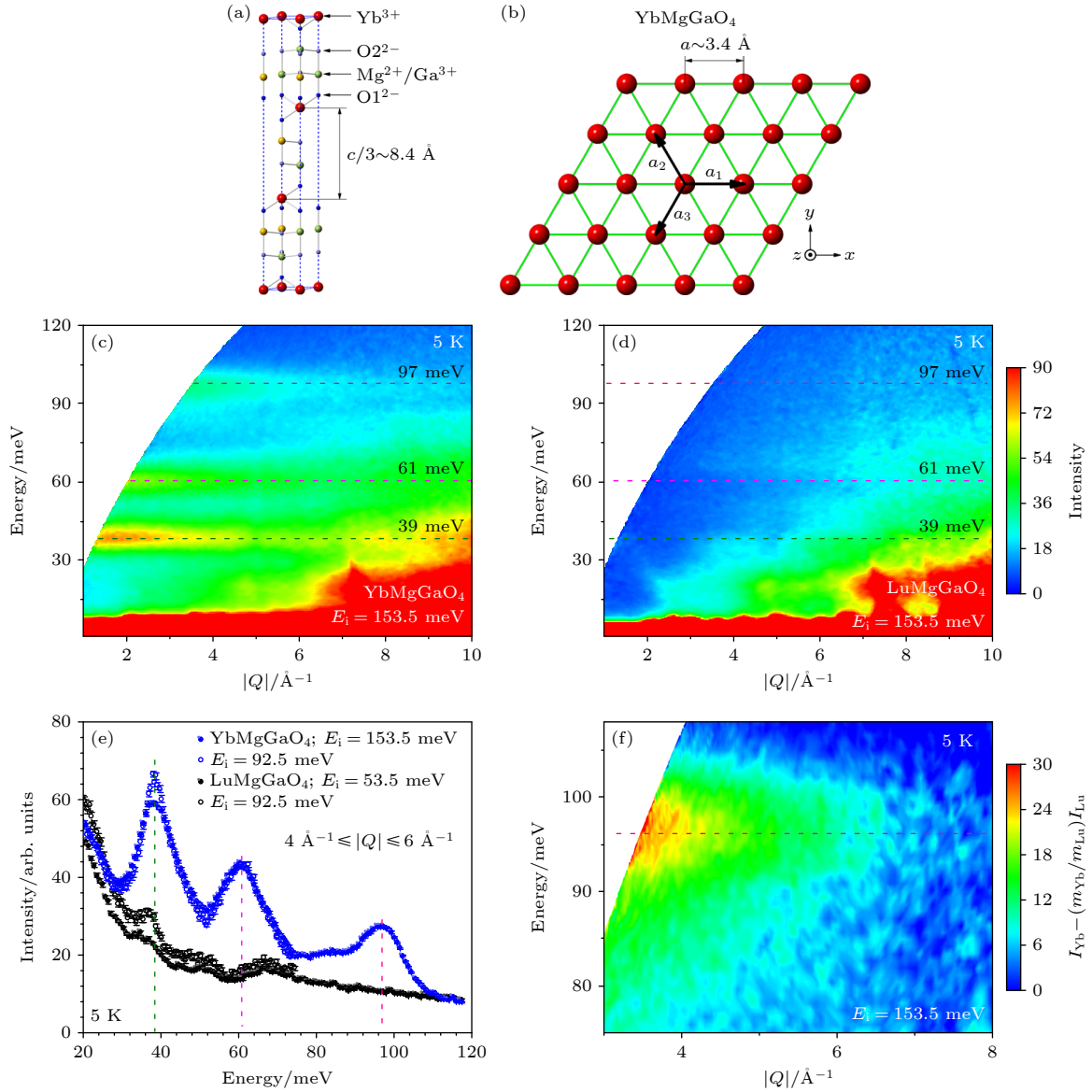


图 2 YbMgGaO₄ 的结构示意与晶场无序表征 (a), (b) YbMgGaO₄ 的晶体结构及 *ab* 面内 Yb³⁺ 三角晶格示意图, 插图定义了自旋分量的坐标系 (出自文献 [21], 已获得授权); (c), (d) 5 K 下 YbMgGaO₄ 和 LuMgGaO₄ 的 INS 谱; (e) 在 $4 \text{ \AA}^{-1} \leq |Q| \leq 6 \text{ \AA}^{-1}$ 范围内积分得到的能量谱, 三条 Yb³⁺ 晶场激发以虚线标出; (f) 高能晶场激发的局部放大图. YbMgGaO₄ 中晶场激发的显著展宽表明其局域晶场参数存在分布, 是 Mg/Ga 无序混排导致晶场随机性的直接证据 (出自文献 [13], 已获得授权)

Fig. 2. Crystal structure and crystal-field disorder characterization of YbMgGaO₄: (a), (b) Crystal structure of YbMgGaO₄ and schematic of the Yb³⁺ triangular lattice in the *ab* plane; the inset defines the coordinate system for the spin components (adapted from Ref. [21] with permission); (c), (d) INS spectra of YbMgGaO₄ and LuMgGaO₄ at 5 K; (e) energy spectrum integrated over $4 \text{ \AA}^{-1} \leq |Q| \leq 6 \text{ \AA}^{-1}$, with three Yb³⁺ crystal-field excitations marked by dashed lines; (f) zoom-in of the high-energy crystal-field excitations. The pronounced broadening of crystal-field excitations in YbMgGaO₄ indicates a distribution of local crystal-field parameters, providing direct evidence for crystal-field randomness arising from Mg/Ga site mixing (adapted from Ref. [13] with permission).

Balents^[32] 以及 Rao 等^[33] 的研究指出: 在无序情形下, 按实验相关参数范围取值的 YbMgGaO₄ 模型更倾向于落入某类条纹有序相一侧, 而不是自旋液体; 真正压制有序并产生看似自旋液体式的连续体激发与谱峰宽化响应, 可能正是由 Mg/Ga 无序引入的电荷随机性与键随机性. 姐妹化合物

YbZnGaO₄ 更进一步暴露了问题: 多种热力学与谱学实验发现其低温表现与自旋玻璃相容, 从而为“无序驱动”叙事提供了有力支撑^[65-68]. 尽管也有 μ SR 和热输运工作继续为内禀自旋液体辩护^[28,33], 但若以洁净实验平台这一标准衡量, YbMgGaO₄ 家族中的化学无序已经对其作为特定自旋液体机

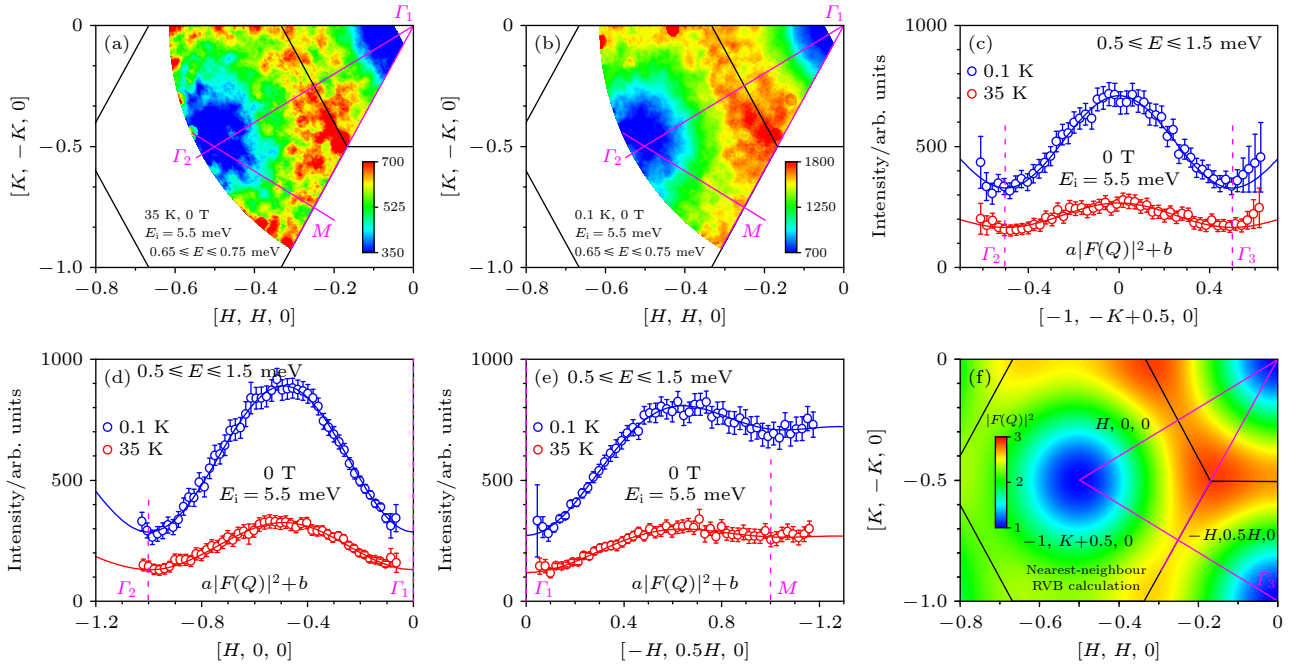


图3 YbMgGaO₄ 低能连续激发的波矢依赖及最近邻 RVB 模型比较 (出自文献 [63], 开放获取) (a), (b) 0 T 下分别于 35 K 和 0.1 K 测得的倒易空间强度分布; (c)–(e) 在 $0.5 \leq E \leq 1.5$ meV 范围内, 沿不同高对称方向的散射强度波矢依赖, 符号为实验数据, 实线为最近邻 RVB 模型计算结果; (f) 最近邻 RVB 模型给出的 $|F(Q)|^2$ 在倒易空间中的分布. 黑色实线表示布里渊区边界, 品红色实线标出高对称方向与特殊倒易点

Fig. 3. Wave-vector dependence of low-energy continuum excitations in YbMgGaO₄ and comparison with the nearest-neighbor RVB model (from Ref. [63], open access): (a), (b) Reciprocal-space intensity distributions measured at 35 K and 0.1 K, respectively, under 0 T; (c)–(e) wave-vector dependence of the scattering intensity along different high-symmetry directions within $0.5 \leq E \leq 1.5$ meV, where symbols denote experimental data and solid lines show results from the nearest-neighbor RVB model; (f) distribution of $|F(Q)|^2$ in reciprocal space calculated from the nearest-neighbor RVB model. Black solid lines mark the Brillouin zone boundaries, and magenta solid lines indicate the high-symmetry directions and special reciprocal points.

制检验对象的适用性构成了实质性限制. 其最大的历史贡献, 或许正在于推动该领域将注意力转向化学上更洁净的稀土三角晶格替代体系.

3.2 NaYbCh₂ (Ch = O, S, Se) 家族: 备受瞩目的纯净三角晶格材料

与 YbMgGaO₄ 相比, NaYbCh₂ 家族最突出的优势在于, 它从化学结构源头上移除了非磁性层中的混价无序. NaYbCh₂ 为 α -NaFeO₂ 型 $R\bar{3}m$ 结构 (图 4(a)), Yb³⁺ 在 *ab* 面内形成理想等边三角晶格, Na⁺ 作为唯一的非磁性层间阳离子将相邻 Yb 层隔开, YbCh₆ 八面体以边共享方式连接 (图 4(b)). 由于层间只有单一同价的 Na⁺, 不存在类似 Mg/Ga 无序混排所带来的随机电荷环境, 因此 Yb 周围的局域库仑势更为均匀. 同时, Yb 位点及最近邻 Yb–Yb 键中心仍具有反演对称性, 最近邻到第三近邻 Dzyaloshinskii-Moriya 相互作用仍然被禁止. 更重要的是, 沿 O→S→Se 的化学替换提供了一条相对洁净的调控路径: 磁交换能标通常呈增大趋

势, 而各向异性项与次近邻交换的相对权重也可能随之变化, 因此该家族成为研究三角晶格量子无序基态最具吸引力的材料体系之一 [19,24].

关于 NaYbCh₂ 的理论刻画, 文献中实际上并行存在两条相互补充的路线. 其一是完整的四参数各向异性交换框架—— J_{zz} , $J_{\pm}$, $J_{\pm\pm}$, $J_{z\pm}$, 再加上可能存在的 J_2 , 这一框架可用于同时分析脉冲磁化、比热、ESR 线宽和晶场谱等多类实验结果 [8,59,60]. 其二是更简化的有效 J_1 - J_2 Heisenberg 视角, 在这一视角下, 人们认为 NaYbCh₂ 的一些主导低能物理可由近 Heisenberg 交换加上适中的 J_2 竞争来描述 [55,58]. 对于这一材料家族, 这两种表述在低能物理的判断上并不矛盾, 而是彼此印证. 前者更适合从实验数据出发提取具体交换参数, 后者则更便于在简化模型中把握其所处的相图位置. 两条路线共同指向的一个重要结论是: NaYbCh₂ 显著不同于 YbMgGaO₄ 所对应的无序主导情形, 而更接近在三角晶格中实现真实的自旋液体态.

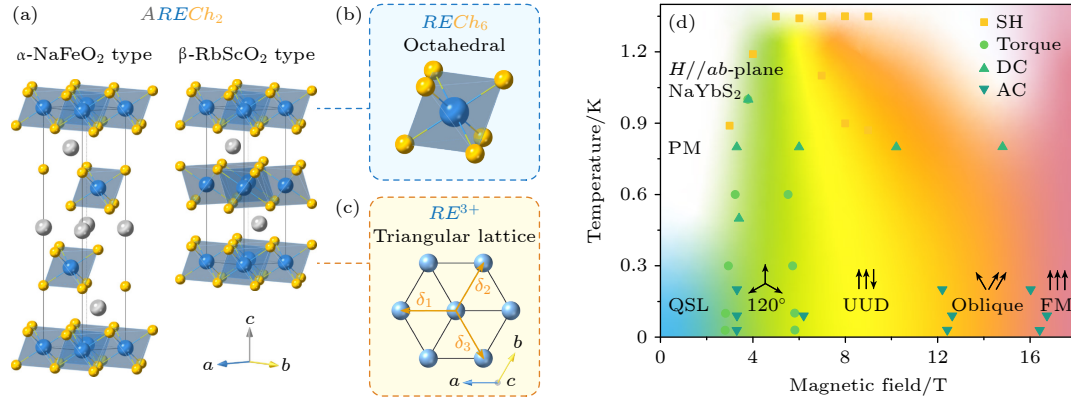


图4 $ARECh_2$ 家族的典型结构与代表性相图 (出自文献 [19], 已获得授权) (a) α - $NaFeO_2$ 型结构 (空间群 $R\bar{3}m$) 与 β - $RbScO_2$ 型结构 (空间群 $P6_3/mmc$) 示意图, 两者均具有层状堆垛特征; (b) 由 RE 离子和 Ch 离子构成的 $RECh_6$ 八面体; (c) RE 离子在层内形成的理想三角晶格, 其中 δ_α ($\alpha = 1, 2, 3$) 表示三条最近邻键方向的原始矢量, 可用于描述键依赖各向异性交换; (d) $NaYbS_2$ 在磁场沿 ab 面方向时的磁场-温度相图, 由比热、转矩以及直流/交流磁化率测量确定. 图中包含量子自旋液体 (QSL)、 120° 有序、上-上-下 (UUD)、倾斜相 (oblique) 以及场极化铁磁 (FM) 等区域 (出自文献 [19], 已获得授权, 数据来源于文献 [69])

Fig. 4. Typical crystal structures and representative phase diagram of the $ARECh_2$ family (adapted with permission from Ref. [19]): (a) Schematics of the α - $NaFeO_2$ -type structure (space group $R\bar{3}m$) and the β - $RbScO_2$ -type structure (space group $P6_3/mmc$), both featuring layered stacking; (b) the $RECh_6$ octahedron formed by RE and Ch ions; (c) the ideal triangular lattice of RE ions within a layer, where δ_α ($\alpha = 1, 2, 3$) denote the primitive vectors along the three nearest-neighbor bond directions, which can be used to describe bond-dependent anisotropic exchange; (d) magnetic field-temperature phase diagram of $NaYbS_2$ with the magnetic field applied in the ab plane, determined from specific heat, torque, and DC/AC magnetic susceptibility measurements. The diagram includes regions of quantum spin liquid (QSL), 120° order, up-up-down (UUD), oblique phase, and field-polarized ferromagnetic (FM) phase (adapted with permission from Ref. [19]; data from Ref. [69]).

3.2.1 $NaYbO_2$: 可由磁场调控的量子无序基态

$NaYbO_2$ 是该家族中热力学与局域探针表征最为充分的成员之一. 2019 年几乎同步发表的两项研究给出了一致结论 [58,70]: 尽管 Curie-Weiss 温度约为 -10 K, 在零场下直到约 50 mK, 体系仍未表现出常规长程磁有序或自旋冻结迹象; 其磁比热在零场中呈现双峰结构, 低温部分近似 T^2 的行为与二维 Dirac 型自旋液体预期的无能隙态密度相容. 与 $YbMgGaO_4$ 相比, $NaYbO_2$ 的另一个关键特征是结构洁净性更高, NMR, μ SR 等局域探针以及中子散射研究均未显示出明显的随机展宽, 而 μ SR 也表明直到约 70 mK 体系仍以持续自旋动力学为主, 而非静态冻结.

$NaYbO_2$ 最引人注目的特征在于其场调控相图: 虽然零场下不发生有序, 但施加约 2 T 的适中磁场即可诱导出清晰的有序相 [71,72], 比热和磁化率中都出现锐利异常, 核磁共振 (nuclear magnetic resonance, NMR) 中自旋-晶格弛豫率也在相变附近出现显著峰值. 该场诱导有序相通常被认为与 XXZ 三角晶格理论预言的“上-上-下” $1/3$ 平台物理相一致. 随后的中子散射工作还在平台相内观察到强磁振子-磁振子相互作用导致的高阶散射以及

上边界的一阶相变特征 [73,74]. 一个在零场保持量子无序、却在较小磁场下进入清晰可辨的场诱导有序相的体系, 难以用单纯的杂质玻璃或随机单态图像加以完整解释. 再结合非化学计量调控可将体系推回零场有序一侧这一事实 [72], $NaYbO_2$ 为“内禀量子无序而非无序模仿”提供了重要证据.

3.2.2 $NaYbS_2$: 局域探针直接确认其洁净性

$NaYbS_2$ 自 2018 年进入研究视野后, 很快就因实验探测到的磁无序性而受到高度关注. Baenitz 等基于单晶磁化、比热、 ^{23}Na NMR、ESR、 μ SR 与 INS 给出的核心结论是: 直到约 260 mK, 体系仍不出现长程磁有序或自旋冻结, 且 ESR 与 NMR 线宽都非常窄 [75-77]. 这一点极具说服力, 因为在存在大范围 g 因子或交换参数分布的体系中, 局域探针通常会表现出明显的非均匀展宽; $NaYbS_2$ 恰恰没有显示出这一特征, 因此 $NaYbS_2$ 进一步清楚展示了 $NaYbCh_2$ 材料体系确实解决了 $YbMgGaO_4$ 中存在的电荷无序的问题. 随后更深入的 ESR 研究还进一步确认了其有效自旋所体现出的强易面各向异性.

后续 μ SR 低至 50 mK 的测量仍未发现静态磁矩. 场依赖热力学和中子实验则显示, 与 $NaYbO_2$

类似, NaYbS_2 在外磁场下会出现一系列有序相和平台态^[60,69], 而零场仍保持为无能隙量子自旋液体候选. 2024 年的一项综合研究结合低温 Raman、ESR 测量与 DMRG 计算, 对其各向异性交换参数进行了较完整的确定, 并认为其基态更接近 Dirac 型量子自旋液体^[60]. 值得注意的是, NaYbS_2 与 NaYbSe_2 的热输运研究显示, 二者在 200 mK 以下 C_m/T 都趋于常数, 指向无能隙态密度; 但残余热导 κ_0/T 却非常小^[78]. Li 等^[78] 因此提出, 自旋子-声子耦合可能有效抑制热流而不消除磁比热中的无能隙信号. 这个结果尚未终结争论, 但它为无能隙磁比热与受抑热输运并存的讨论提供了一个具体实例.

3.2.3 NaYbSe_2 : 目前的旗舰体系

NaYbSe_2 之所以成为该家族的旗舰体系, 至少有两个直接原因: 其一, Yb-Se-Yb 超交换更强, Curie-Weiss 温度更高, 使得相关磁能标更容易被谱学手段解析; 其二, 通过硒助熔剂可以制备体积足够大的高质量单晶, 从而使单晶 INS 实验成为可能. Ranjith 等^[79] 和 Luther 等^[80] 的早期热力学与局域实验探测的工作已经确认, NaYbSe_2 在零场下直到约 50 mK 都没有自旋冻结或长程磁有序, 并表现出非常强的场各向异性. 与 NaYbO_2 和 NaYbS_2 类似, 适中的面内磁场会驱动其进入“上-上-下”平台相, 对应的 Néel 温度与 NMR 弛豫率峰值都十分清晰. 而沿 c 轴则需要更高外场才能实现类似转变, 这直接反映了其易面交换特征.

围绕 NaYbSe_2 的晶体场研究, 目前也已建立了较扎实的实验基础: 中子散射与 Raman 研究给出了 15.8, 24.3 和 30.5 meV 三条清晰的晶场跃迁线, 并拟合得到 $g_{ab} \approx 2.9$, $g_c \approx 1$ 的强各向异性基态 Kramers 双重态^[59,81]. 随后, 结合晶体场激发、磁化、比热与 ESR 线宽的多实验手段分析, 研究者构建了适用于有限温区的有效磁哈密顿量, 并指出在约 25 K 以下, 自旋-自旋相互作用开始主导其低能磁响应^[59]. μSR 进一步证实体系在 50 mK 仍处于具有持续动力学的无能隙量子自旋液体候选状态^[82].

真正决定该体系地位的, 是 Dai 等^[83] 完成的单晶 INS 工作, 他们在 40 mK 下对整个二维布里渊区的 $S(\mathbf{q}, \omega)$ 进行了系统测量, 发现自旋激发谱在最低可测能区仍保持宽广连续体激发的特征, 且连续体激发的高能边界随动量发生系统性色散, 这

一特征曾被解释为与二维自旋子费米面粒子-空穴激发的上边界相一致, 如图 5(h) 所示. 更重要的是, 这一结果出现在一个晶体场跃迁线尖锐、NMR/ESR 线宽狭窄, 且不存在混价非磁层无序的体系中. 因此, 从化学洁净的稀土三角晶格单晶中直接辨认自旋子型连续体激发这一角度看, NaYbSe_2 目前是证据最充分的候选体系之一. 结合 μSR 、场依赖 INS、恒定的 C_m/T 以及高压下的 Mott 转变与超导迹象, NaYbSe_2 已成为当前三角晶格量子自旋液体研究中最重要实验平台.

此外, 压力还把 NaYbSe_2 推向了更引人遐想的方向: 在数十 GPa 量级下, 该体系会经历 Mott 绝缘体到金属的转变, 随后出现超导, 最高 T_c 可达约 8 K^[84–86]. 围绕这一高压相图的 DFT+DMFT 研究进一步提出, 常压 NaYbSe_2 可能是一种电荷转移绝缘体, 而高压金属态经过一个非费米液体区域后再进入重费米子型超导相^[87]. 尽管这部分工作已超出探索三角晶格上的自旋液体的范畴, 但它恰恰呼应了 Anderson 最初自旋液体与非常规超导之间可能存在深层联系的长远设想.

3.2.4 Lu 掺杂与磁稀释: 从单离子、二聚体到多体纠缠

对于 NaYbCh_2 家族, 另一条重要研究线索是用无磁性的 Lu^{3+} 对 Yb^{3+} 子晶格进行系统稀释. 这一策略有双重意义: 一方面, 它可以检验量子自旋液体基态对位点稀释的稳定性; 另一方面, 它把致密磁晶格连续地连接到稀薄极限, 使得单离子各向异性与二聚体交换可以被单独提取出来. 对 $\text{NaYb}_{1-x}\text{Lu}_x\text{S}_2$ 的系统研究表明, 在整个固溶系列中均未观察到自旋玻璃行为, 这一结论在接近几何渗流阈值时也没有改变^[88], 这也从另外一个角度排除了 NaYbS_2 零场下的无序性归因于自旋玻璃的可能性.

对 $\text{NaLu}_x\text{Yb}_{1-x}\text{Se}_2$ 的研究则给出了更细致的演化图景. 从 Lu 富集的单离子极限, 到中等浓度下以 Yb–Yb 近邻二聚体为主的关联态, 再到 $x = 0$ 时完全多体纠缠的量子自旋液体候选^[89]. 相应热容分析由此提取出单离子和二聚体尺度上的有效交换信息, 为哈密顿量提供了另一种局域约束. 更进一步, 近期工作提出, 虽然体热容仍显示无能隙特征, 但真正承担长程热输运的载流子可能是有能隙的, 其根源是纠缠并非在整个样品中均匀分布,

而是在随机尺度的纠缠簇上建立^[90]. 这一“随机簇纠缠”图像并不否认 NaYbSe₂ 的强量子关联本质, 但提示我们, 在现实材料中, 自旋液体也许并不总以最理想、最均匀的方式实现.

3.2.5 小结: NaYbCh₂ 家族已经实现了什么

从整个家族的角度看, 支持 NaYbCh₂ 作为当前最理想三角晶格量子自旋液体平台的证据主要有三条. 第一, 结构洁净性在这里并非停留于化学层面, 而是得到了实验直接验证: 尖锐的晶场谱线、狭窄的 ESR/NMR 线宽, 以及稀释后仍不出现自旋玻璃, 都表明 YbMgGaO₄ 中最关键的电荷无序问题在这里得到了实质性规避. 第二, 三大主成员在零场下都一直到 mK 量级保持动态无序, μ SR 没有看到静态磁矩, 而 NaYbSe₂ 的单晶 INS 进一步给出了化学洁净背景下的自旋子型连续体激发. 第三, 体系对外部微扰的响应与洁净体系哈密顿量的理论预期高度一致: 适中磁场可以把它们稳定地推入“上-上-下”平台相, 适量非化学计量或稀释会以可理解的方式扰动这一基态, 高压则把 NaYbSe₂ 与 NaYbS₂ 推向更接近金属态乃至超导的区域.

真正仍然开放的问题已经不再是 NaYbCh₂ 是否属于量子自旋液体候选, 而是它们究竟分别对应哪一种自旋液体: Dirac、自旋子费米面, Z_2 有能隙相, 还是某种受到弱无序调制的随机簇纠缠态. 要进一步回答这个问题, 就需要借助同一家族中能够发生有序的材料作为哈密顿量参照体系.

3.3 K/Cs 同系物: 作为哈密顿量参照体系的有序材料

即便承认 NaYbCh₂ 家族在结构上干净、低温性质也与量子自旋液体相容, 一个定量困难依然存在, 即处于涨落基态的体系在 INS 实验中给出的是连续激发谱, 而不是便于直接拟合的尖锐磁振子色散谱; 比热与磁化率只能提供一两个交换尺度, 难以唯一锁定多参数哈密顿量. 因此, 近年来领域中形成的一条重要策略, 是转而研究同一家族中被化学调控推到有序一侧的成员, 典型代表有 KYbO₂, KYbSe₂ 与 CsYbSe₂^[54,55,91–93]. 对于这些体系, 低温下可分辨的磁有序或准有序响应使得其磁振子谱能够被非线性自旋波理论或相关数值方法更稳健地拟合, 从而为整条 AYbCh₂ 化学调控轴

提供定量参照体系.

KYbO₂ 的意义在于首先展示了仅仅通过 A 位阳离子替换, 就足以使 AYbO₂ 系列跨越相图内部的不同区域^[91]. 相较于 NaYbO₂, 更大的 K⁺会在晶格上引入明显的各向异性拉伸, 应力不仅降低平均交换与饱和场, 还会把 Yb³⁺ 的 g 张量变得近乎各向同性. 更显著的是, NaYbO₂ 常见的 1/3 平台在 KYbO₂ 中被 1/2 平台所取代^[91], 提示后者进入了与“上-上-下”场诱导有序更相关的区域. 这说明 A 位替换并非只是简单缩放交换强度, 而是真正在改变哈密顿量各参数的相对权重.

在所有 AYbCh₂ 相关文献中, KYbSe₂ 的单晶 INS 研究可能是锚定哈密顿量最具决定性的工作, 如图 5(d), (e) 所示. KYbSe₂ 在约 290 mK 以下进入 120°反铁磁有序态^[54,55], 其单晶中子谱同时展示出两个关键特征: 一是从 M 点出发、带宽约 0.3 meV 的尖锐磁振子分支, 并在 M 点附近出现显著的旋子特征低谷^[54,55], 说明该体系确实非常接近 Heisenberg 极限; 二是在远高于单磁振子带宽的能区仍存在宽广连续体激发, 且其积分谱权重甚至超过传统磁振子. 这一连续体激发过宽很难完全归因于双磁振子散射^[54], 反而与分数化激发联系更紧密.

真正关键的是定量拟合, Scheie 等^[55] 把交换模型与高温级数展开联合用于解析 KYbSe₂, 得到几乎以最近邻 Heisenberg 交换为主、仅含很小 J_2 的哈密顿量, 其中最核心的比值 $J_2/J_1 = 0.047(7)$. 这一数值位于理论上 J_1 - J_2 Heisenberg 自旋液体窗口下边界 $J_2/J_1 \approx 0.06$ 的稍小一侧, 也就是说, KYbSe₂ 就落在非常接近自旋液体但仍处于有序侧的位置. 随后同一研究组进一步对 NaYbSe₂ 在场诱导“上-上-下”平台中的磁振子谱进行类似拟合, 发现其 J_2/J_1 比 KYbSe₂ 更大, 足以把 NaYbSe₂ 推到相同边界的另一侧, 即理论预言的自旋液体区间内部. 就目前而言, 这是支持 NaYbSe₂ 内禀接近量子自旋态^[55]、而非仅由无序偶然导致的无序态的最重要定量证据之一.

CsYbSe₂ 则把 A 位化学压力继续向更大离子半径方向推进. 其整体交换能标更弱, 零场长程有序更不易建立, 但中子散射仍可在 K 点附近观测到典型的二维 120°短程序信号^[92,94]. 更重要的是, Xie 等^[93] 随后通过单晶 INS 实验在整个外场范围内系统测绘了其激发谱, 并与密度矩阵重整化群的

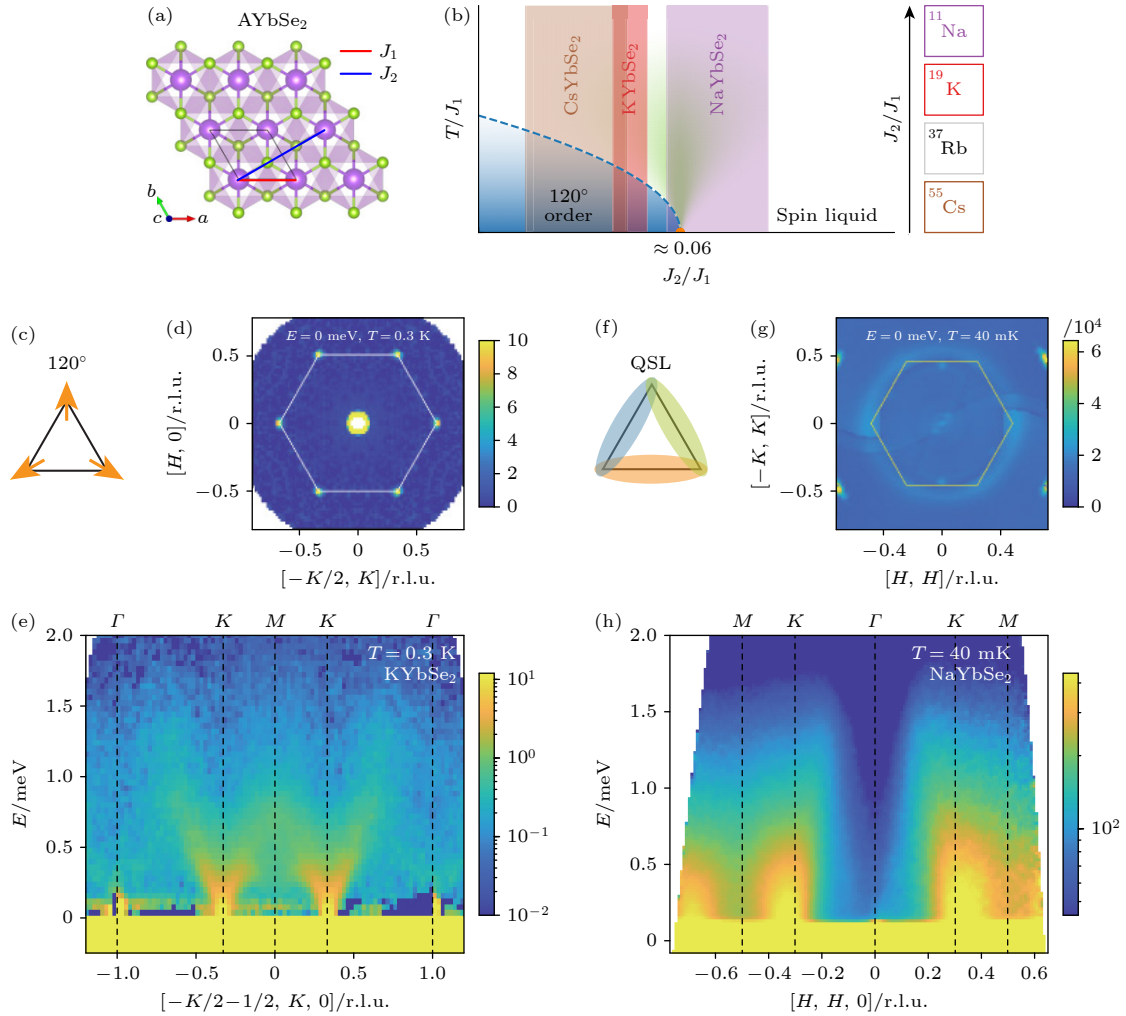


图 5 AYbSe_2 家族从有序侧到量子无序侧的有效调控图景 (a) 层内 Yb^{3+} 三角晶格上的 J_1 - J_2 交换示意; (b) 以 J_2/J_1 为调控参数的示意相图, 显示 CsYbSe_2 , KYbSe_2 和 NaYbSe_2 从 120° 有序侧向量子自旋液体 (QSL) 区域演化 (改编自文献 [55], 已获授权); (c) 120° 反铁磁有序示意; (d), (e) KYbSe_2 在 0.3 K 下的弹性中子散射和低频 INS 结果, 表明其具有 120° 长程有序 (改编自文献 [19], 已获授权; 数据来自文献 [54]); (f) QSL 相中短程 RVB 示意; (g), (h) NaYbSe_2 在 40 mK 下的弹性中子散射和低频 INS 结果, 显示无磁 Bragg 峰而存在宽广连续谱, 指向量子无序基态 (改编自文献 [19], 已获授权; 数据来自文献 [83])

Fig. 5. Effective tuning of the AYbSe_2 family from the ordered to the quantum-disordered side: (a) J_1 - J_2 exchange on the Yb^{3+} triangular lattice; (b) schematic phase diagram versus J_2/J_1 , showing CsYbSe_2 , KYbSe_2 , and NaYbSe_2 evolving from the 120° ordered side toward the quantum spin liquid (QSL) regime (adapted with permission from Ref. [55]); (c) 120° antiferromagnetic order; (d), (e) elastic neutron scattering and low-energy INS of KYbSe_2 at 0.3 K, indicating 120° long-range order (adapted with permission from Ref. [19]; data from Ref. [54]); (f) short-range RVB correlations in the QSL phase; (g), (h) elastic neutron scattering and low-energy INS of NaYbSe_2 at 40 mK, showing the absence of magnetic Bragg peaks and a broad continuum, consistent with a quantum-disordered ground state (adapted with permission from Ref. [19]; data from Ref. [83]).

计算进行逐场比较, 得到令人信服的一致性. 这意味着 CsYbSe_2 可以被看作目前最接近纯自旋 $1/2$ 三角 Heisenberg 反铁磁体的实验实现之一. 同时, 对其晶体场参数与高场磁矩的系统提取, 还把 van Vleck 修正对稀土三角磁体各向异性测量的重要性明确展示出来 [95].

此外, 压力也为这条化学调控轴提供了独立验证. 已有研究表明, 对 KYbSe_2 加压会提高其有序温度, 说明压力通过压缩晶格降低 J_2/J_1 , 把体系

从自旋液体边界向更稳固的 120° 有序相推进 [55]; 而 CsYbSe_2 由于常压下晶格尺度更大、层间结构更为疏松, 进入金属化相关结构转变所需的压力也显著更高 [96]. 综合 K, Cs 两端成员以及压力调控的结果可以认为, AYbCh_2 家族提供了一条可连续调节的材料参数轴. 改变 A 位离子形成的化学压力与外加静水压力在趋势上相互印证, 都能够推动有效交换参数发生系统变化, 并进而改变材料在 J_1 - J_2 相图中的相对位置.

3.4 其他 Yb 基三角晶格化合物与方法学扩展

除上述主线体系外,研究者还在不断拓展更广泛的 Yb 基三角晶格候选. CuYbSe_2 用单价过渡金属 Cu^+ 替代碱金属 A 位,保持了理想的 Yb^{3+} 三角晶格和绝缘特性. 现有实验表明,在 1.8 K 以下仍未见长程有序^[97],说明 AYbSe_2 的化学设计思想并不限于碱金属位. TiYbSe_2 则把 A 位扩展到更大且更可极化的 Ti^+ ,其饱和场和场诱导有序温度都更高,但在零场下同样没有常规磁有序,并保持与 NaYbSe_2 类似的易面响应与场诱导有序现象^[98]. 这些体系尚缺乏像 NaYbSe_2 和 KYbSe_2 那样完整的单晶谱学哈密顿量拟合,但它们表明, Yb 基三角晶格候选的可实现范围仍在继续向更宽的化学组成空间拓展.

LiYbSe_2 则提供了一个非常重要的反例. 虽然化学计量式同样写作 AYbSe_2 ,但由于 Li^+ 半径太小, LiYbSe_2 不再稳定于层状铜铁矿结构,而是形成立方烧绿石结构. 此时 Yb^{3+} 构成的是角共享四面体网络,而非二维三角晶格^[99]. 因此, LiYbSe_2 的阻挫磁性尽管同样有趣,但从本文主题的角度必须明确划出边界,它不是三角晶格反铁磁体,不能用来直接推断 NaYbSe_2 及其同系物的物理.

另一方面,磁稀释本身也逐渐发展成一种方法学工具. 通过在 NaYbSe_2 中重度掺入 Lu,将 Yb^{3+} 稀释到以孤立近邻二聚体和小团簇为主的极限后,可以借助低温比热、磁化及磁场演化,追踪体系从孤立磁离子到二聚体主导关联、再到更大尺度局域纠缠的演化过程^[89,90]. 此外,该方法也提供了另一条哈密顿量提取路径,与通过有序参照体系中的自旋波谱拟合交换参数的思路相互补充:即便缺少明确的有序同系物,也可以利用稀释极限下局域二聚体或有限团簇的低温磁化与热力学响应,先确定局域交换耦合的大小及各向异性,再将其作为约束条件外推到母体材料的有效自旋哈密顿量. 就这一点而言, NaYbCh_2 家族不仅是量子自旋液体候选平台,也正在成为多种哈密顿量提取方法的试验场^[88-90,100].

此外, $\text{YbTa}_7\text{O}_{19}$ 也为稀土三角晶格量子磁性提供了新的候选平台:现有研究表明,该材料具有无明显结构无序的二维层状自旋 1/2 三角晶格,并表现出显著的易面型磁各向异性^[101]. 这说明 $\text{RETa}_7\text{O}_{19}$

家族有望成为研究不同各向异性极限下三角晶格有效自旋哈密顿量的重要材料体系^[101-103].

3.5 理论前沿与开放问题:究竟对应哪一类量子无序基态?

在经验层面, NaYbCh_2 家族已经把问题从是否存在三角晶格量子自旋液体推进到了其低能量子无序态究竟应如何表述. 在当前文献中,最常被讨论的有三类方案. 第一类是自旋子费米面态,对应动量空间中存在扩展费米面的费米子自旋子,并受 $U(1)$ 规范涨落修正. 它通常预言 $C_m \propto T$ 或 $T^{2/3}$,以及具有动量依赖高能边界的宽连续激发谱^[27,83]. 第二类是 $U(1)$ Dirac 自旋液体,其低能自旋子只在少数 Dirac 点附近无能隙,因此最低温比热更接近 T^2 ,动力学结构因子在不同波矢上的低能谱权重变化也与费米面态不同^[52]. 第三类则是近年来逐渐受到重视的“随机簇纠缠态”^[90],体系依然具有强量子纠缠,但纠缠并非均匀铺展于整个样品,而是在随机尺度的有限簇上组织起来,从而可能解释比热无能隙而热载流子却有能隙这一看似矛盾的组合. 需要指出的是,第三类图像与前两类洁净极限下的 parton 规范场态并非完全同一层级. 更准确地说,它更像是针对现实材料中空间非均匀性和热输运异常所提出的一种有效描述框架.

区分这些方案,需要一组更具针对性的实验. 首先是极化 INS 实验,通过分离纵向与横向的 $S(\mathbf{q}, \omega)$ 分量,有望区分更偏向横向涨落的 Dirac 图景与更接近各向同性的费米面图景. 其次是低温热输运,尤其是纵向热导与热霍尔效应. 原则上,若体系中存在可移动的无能隙费米子自旋子,则除了贡献比热外,也应在 $T \rightarrow 0$ 极限贡献有限的 κ_0/T . Dirac 自旋液体则通常给出 $\kappa_0/T = 0$ 但存在特定幂律的低温热导. 当前 NaYbS_2 与 NaYbSe_2 中“ C_m/T 为常数而 κ_0/T 极小”的现象^[78],正是推动该方向向更定量理论与更高精度实验迈进的关键动机. 热霍尔效应由于较少受到声子背景干扰,可能是识别分数化载流子的最直接输运手段^[104,105].

第三个非常有前景的方向是把量子 Fisher 信息^[106]作为纠缠判据系统地应用到现有与未来的单晶中子数据中. Scheie 等^[54]在 KYbSe_2 上已经表明,由 $S(\mathbf{q}, \omega)$ 反演得到的信息熵密度可以超过二体纠缠界,从而直接证明多体纠缠在真实三角晶格反铁磁体中的存在. 若类似分析能够成功施加到

NaYbSe₂ 等真正零场无序体系上, 那么自旋液体的证据就将不再主要是各种有序缺席的负判据, 而将转化为关于多体纠缠与分数化谱权重的正判据. 最后, 场诱导有序边界与高压 Mott 转变边界的精确定量, 也会反过来约束底层哈密顿量, 并帮助检验当前基于投影对称群的自旋液体候选态分类, 是否足以涵盖并解释已有实验事实^[27,107].

4 总结与展望

回顾半个多世纪的发展, 三角晶格量子自旋液体问题已经从一个极具启发性的理论设想, 逐步演化成一个由高精度数值计算、复杂稀土材料化学以及多种前沿实验探测手段共同推进的研究方向. 理论上, 最简单的最近邻 Heisenberg 三角晶格并不能实现 Anderson 最初设想的自旋液体, 而是保持 120° 有序. 真正打开自旋液体窗口的是 J_2 , XXZ 各向异性以及强自旋-轨道耦合诱导的键依赖交换. 实验上, YbMgGaO₄ 家族率先展示了长时间涨落等令人兴奋的现象, 但其不可避免的 Mg/Ga(或 Zn/Ga) 无序又使得“本征自旋液体”与“无序诱导的类自旋液体响应”之间的界限长期难以厘清^[13,21,25].

将这一问题推进到新阶段的, 是结构上更洁净的 NaYbCh₂ 家族^[19,24]. 尖锐的晶体场跃迁、狭窄的 NMR/ESR 线宽、mK 下持续存在的动力学无序、单晶 INS 所揭示的宽连续激发谱, 以及在磁场下干净出现的“上-上-下”平台, 共同构成了目前最有力的证据链. 与此同时, KYbSe₂, CsYbSe₂ 等有序同系物又第一次把这些零场无序体系可靠地锚定到了 J_1 - J_2 相图上^[54,55,93], 使 NaYbSe₂ 位于自旋液体相不再只是定性印象, 而是获得了明确的哈密顿量参照. 本文因此倾向于做出一个较强的论断: 就当前已知的稀土三角晶格材料而言, NaYbCh₂ 家族提供了实验上最可信、最有希望的量子自旋液体平台.

当然, 故事尚未结束. 真正悬而未决的问题, 不仅在于这些材料究竟更接近哪一种量子自旋液体图像, 也在于它们在多大程度上体现了理想均匀自旋液体与现实材料中弱无序修饰之间的竞争与折中. 未来数年中, 系统的低温热输运与热霍尔测量、偏振中子散射、量子 Fisher 信息纠缠判据分析, 以及沿化学与压力双调控轴继续发展更多高质量参照材料, 可能将最终完成这幅图景. 换言之,

三角晶格量子自旋液体这一由 Anderson 提出的经典问题, 如今第一次真正拥有了一组值得严肃追问到底的材料体系. 接下来更为关键的是如何把候选变成可以被量化、被区分、被最终定性的物理事实.

参考文献

- [1] Anderson P 1973 *Mater. Res. Bull.* **8** 153
- [2] Anderson P W 1987 *Science* **235** 1196
- [3] Kitaev A Y 2003 *Ann. Phys.* **303** 2
- [4] Bernu B, Lhuillier C, Pierre L 1992 *Phys. Rev. Lett.* **69** 2590
- [5] White S R, Chernyshev A L 2007 *Phys. Rev. Lett.* **99** 127004
- [6] Kaneko R, Morita S, Imada M 2014 *J. Phys. Soc. Jpn.* **83** 093707
- [7] Yamamoto D, Marmorini G, Danshita I 2014 *Phys. Rev. Lett.* **112** 127203
- [8] Li Y D, Wang X, Chen G 2016 *Phys. Rev. B* **94** 035107
- [9] Coldea R, Tennant D A, Tsvetlik A M, Tyliczynski Z 2001 *Phys. Rev. Lett.* **86** 1335
- [10] Starykh O A 2015 *Rep. Prog. Phys.* **78** 052502
- [11] Coldea R, Tennant D A, Habicht K, Smeibidl P, Wolters C, Tyliczynski Z 2002 *Phys. Rev. Lett.* **88** 137203
- [12] Griset C, Head S, Alicea J, Starykh O A 2011 *Phys. Rev. B* **84** 245108
- [13] Li Y, Adroja D, Bewley R I, Voneshen D, Tsirlin A A, Gegenwart P, Zhang Q 2017 *Phys. Rev. Lett.* **118** 107202
- [14] Zhu Z, Maksimov P A, White S R, Chernyshev A L 2017 *Phys. Rev. Lett.* **119** 157201
- [15] Kimchi I, Nahum A, Senthil T 2018 *Phys. Rev. X* **8** 031028
- [16] Wen J, Yu S L, Li S, Yu W, Li J X 2019 *npj Quantum Mater.* **4** 12
- [17] Broholm C, Cava R J, Kivelson S A, Nocera D G, Norman M R, Senthil T 2020 *Science* **367** eaay0668
- [18] Savary L, Balents L 2017 *Rep. Prog. Phys.* **80** 016502
- [19] Xie M, Zhuo W, Cai Y, Zhang Z, Zhang Q 2024 *Chin. Phys. Lett.* **41** 117505
- [20] Rau J G, Gingras M J P 2018 *Phys. Rev. B* **98** 054408
- [21] Li Y, Chen G, Tong W, Pi L, Liu J, Yang Z, Wang X, Zhang Q 2015 *Phys. Rev. Lett.* **115** 167203
- [22] Maksimov P A, Zhu Z, White S R, Chernyshev A L 2019 *Phys. Rev. X* **9** 021017
- [23] Li Y, Liao H, Zhang Z, Li S, Jin F, Ling L, Zhang L, Zou Y, Pi L, Yang Z, Wang J, Wu Z, Zhang Q 2015 *Sci. Rep.* **5** 16419
- [24] Liu W, Zhang Z, Ji J, Liu Y, Li J, Wang X, Lei H, Chen G, Zhang Q 2018 *Chin. Phys. Lett.* **35** 117501
- [25] Shen Y, Li Y D, Wo H, Li Y, Shen S, Pan B, Wang Q, Walker H C, Steffens P, Boehm M, Hao Y, Quintero-Castro D L, Harriger L W, Frontzek M D, Hao L, Meng S, Zhang Q, Chen G, Zhao J 2016 *Nature* **540** 559
- [26] Paddison J A, Daum M, Dun Z, Ehlers G, Liu Y, Stone M, Zhou H, Mourigal M 2017 *Nat. Phys.* **13** 117
- [27] Li Y D, Lu Y M, Chen G 2017 *Phys. Rev. B* **96** 054445
- [28] Li Y, Adroja D, Biswas P K, Baker P J, Zhang Q, Liu J, Tsirlin A A, Gegenwart P, Zhang Q 2016 *Phys. Rev. Lett.* **117** 097201
- [29] Ding Z, Zhu Z, Zhang J, Tan C, Yang Y, MacLaughlin D E, Shu L 2020 *Phys. Rev. B* **102** 014428
- [30] Shen Y, Li Y D, Walker H C, Steffens P, Boehm M, Zhang X, Shen S, Wo H, Chen G, Zhao J 2018 *Nat. Commun.* **9** 4138

- [31] Li Y, Bachus S, Liu B, Radelytskyi I, Bertin A, Schneidewind A, Tokiwa Y, Tsirlin A A, Gegenwart P 2019 *Phys. Rev. Lett.* **122** 137201
- [32] Parker E, Balents L 2018 *Phys. Rev. B* **97** 184413
- [33] Rao X, Hussain G, Huang Q, Chu W J, Li N, Zhao X, Dun Z, Choi E S, Asaba T, Chen L, Li L, Yue X Y, Wang N N, Cheng J G, Gao Y H, Shen Y, Zhao J, Chen G, Zhou H D, Sun X F 2021 *Nat. Commun.* **12** 4949
- [34] Wannier G H 1950 *Phys. Rev.* **79** 357
- [35] Capriotti L, Trumper A E, Sorella S 1999 *Phys. Rev. Lett.* **82** 3899
- [36] Zheng W, Fjærestad J O, Singh R R P, McKenzie R H, Coldea R 2006 *Phys. Rev. B* **74** 224420
- [37] Chernyshev A L, Zhitomirsky M E 2009 *Phys. Rev. B* **79** 144416
- [38] Mourigal M, Fuhrman W T, Chernyshev A L, Zhitomirsky M E 2013 *Phys. Rev. B* **88** 094407
- [39] Seabra L, Momoi T, Sindzingre P, Shannon N 2011 *Phys. Rev. B* **84** 214418
- [40] Susuki T, Kurita N, Tanaka T, Nojiri H, Matsuo A, Kindo K, Tanaka H 2013 *Phys. Rev. Lett.* **110** 267201
- [41] Shirata Y, Tanaka H, Matsuo A, Kindo K 2012 *Phys. Rev. Lett.* **108** 057205
- [42] Ma J, Kamiya Y, Hong T, Cao H B, Ehlers G, Tian W, Batista C D, Dun Z L, Zhou H D, Matsuda M 2016 *Phys. Rev. Lett.* **116** 087201
- [43] Chi R, Liu Y, Wan Y, Liao H J, Xiang T 2022 *Phys. Rev. Lett.* **129** 227201
- [44] Kojima Y, Watanabe M, Kurita N, Tanaka H, Matsuo A, Kindo K, Avdeev M 2018 *Phys. Rev. B* **98** 174406
- [45] Park P, Ghioldi E A, May A F, Kolopus J A, Podlesnyak A A, Calder S, Paddison J A M, Trumper A E, Manuel L O, Batista C D, Stone M B, Halász G B, Christianson A D 2024 *Nat. Commun.* **15** 7264
- [46] Lecheminant P, Bernu B, Lhuillier C, Pierre L 1995 *Phys. Rev. B* **52** 6647
- [47] Li P H Y, Bishop R F, Campbell C E 2015 *Phys. Rev. B* **91** 014426
- [48] Zhu Z, White S R 2015 *Phys. Rev. B* **92** 041105
- [49] Hu W J, Gong S S, Zhu W, Sheng D N 2015 *Phys. Rev. B* **92** 140403
- [50] Iqbal Y, Hu W J, Thomale R, Poilblanc D, Becca F 2016 *Phys. Rev. B* **93** 144411
- [51] Gong S S, Zhu W, Zhu J X, Sheng D N, Yang K 2017 *Phys. Rev. B* **96** 075116
- [52] Hu S, Zhu W, Eggert S, He Y C 2019 *Phys. Rev. Lett.* **123** 207203
- [53] Gong S S, Zheng W, Lee M, Lu Y M, Sheng D N 2019 *Phys. Rev. B* **100** 241111
- [54] Scheie A O, Ghioldi E A, Xing J, Paddison J A M, Sherman N E, Dupont M, Sanjeeva L D, Lee S, Woods A J, Abernathy D, Pajerowski D M, Williams T J, Zhang S S, Manuel L O, Trumper A E, Pemmaraju C D, Sefat A S, Parker D S, Devereaux T P, Movshovich R, Moore J E, Batista C D, Tennant D A 2024 *Nat. Phys.* **20** 74
- [55] Scheie A O, Kamiya Y, Zhang H, Lee S, Woods A J, Ajesh M O, Gonzalez M G, Bernu B, Villanova J W, Xing J, Huang Q, Zhang Q, Ma J, Choi E S, Pajerowski D M, Zhou H, Sefat A S, Okamoto S, Berlijn T, Messio L, Movshovich R, Batista C D, Tennant D A 2024 *Phys. Rev. B* **109** 014425
- [56] Luo Q, Hu S, Xi B, Zhao J, Wang X 2017 *Phys. Rev. B* **95** 165110
- [57] Zhu Z, Maksimov P A, White S R, Chernyshev A L 2018 *Phys. Rev. Lett.* **120** 207203
- [58] Bordelon M M, Kenney E, Liu C, Hogan T, Posthuma L, Kavand M, Lyu Y, Sherwin M, Butch N P, Brown C, Graf M J, Balents L, Wilson S D 2019 *Nat. Phys.* **15** 1058
- [59] Zhang Z, Li J, Liu W, Zhang Z, Ji J, Jin F, Chen R, Wang J, Wang X, Ma J, Zhang Q 2021 *Phys. Rev. B* **103** 184419
- [60] Zhuo W, Zhang Z, Xie M, Zhang A, Ji J, Jin F, Zhang Q 2024 *Sci. China, Ser. G* **67** 107411
- [61] Zhang X, Mahmood F, Daum M, Dun Z, Paddison J A M, Laurita N J, Hong T, Zhou H, Armitage N P, Mourigal M 2018 *Phys. Rev. X* **8** 031001
- [62] Li Y D, Shen Y, Li Y, Zhao J, Chen G 2018 *Phys. Rev. B* **97** 125105
- [63] Li Y, Adroja D, Voneshen D, Bewley R I, Zhang Q, Tsirlin A A, Gegenwart P 2017 *Nat. Commun.* **8** 15814
- [64] Xu Y, Zhang J, Li Y S, Yu Y J, Hong X C, Zhang Q M, Li S Y 2016 *Phys. Rev. Lett.* **117** 267202
- [65] Ma Z, Wang J, Dong Z Y, Zhang J, Li S, Zheng S H, Yu Y, Wang W, Che L, Ran K, Bao S, Cai Z, Černák P, Schneidewind A, Yano S, Gardner J S, Lu X, Yu S L, Liu J M, Li S, Li J X, Wen J 2018 *Phys. Rev. Lett.* **120** 087201
- [66] Ma Z, Dong Z Y, Wang J, Zheng S, Ran K, Bao S, Cai Z, Shangguan Y, Wang W, Boehm M, Steffens P, Regnault L P, Wang X, Su Y, Yu S L, Liu J M, Li J X, Wen J 2021 *Phys. Rev. B* **104** 224433
- [67] Steinhardt W, Maksimov P A, Dissanayake S, Shi Z, Butch N P, Graf D, Podlesnyak A, Liu Y, Zhao Y, Xu G, Lynn J W, Marjerrison C, Chernyshev A L, Haravifard S 2021 *npj Quantum Mater.* **6** 78
- [68] Pratt F L, Lang F, Steinhardt W, Haravifard S, Blundell S J 2022 *Phys. Rev. B* **106** L060401
- [69] Wu J, Li J, Zhang Z, Liu C, Gao Y H, Feng E, Deng G, Ren Q, Wang Z, Chen R, Embs J, Zhu F, Huang Q, Xiang Z, Chen L, Wu Y, Choi E S, Qu Z, Li L, Wang J, Zhou H, Su Y, Wang X, Chen G, Zhang Q, Ma J 2022 *Quantum Frontiers* **1** 13
- [70] Ding L, Manuel P, Bachus S, Gräßler F, Gegenwart P, Singleton J, Johnson R D, Walker H C, Adroja D T, Hillier A D, Tsirlin A A 2019 *Phys. Rev. B* **100** 144432
- [71] Ranjith K M, Dmytriieva D, Khim S, Sichelschmidt J, Luther S, Ehlers D, Yasuoka H, Wosnitzer J, Tsirlin A A, Kühne H, Baenitz M 2019 *Phys. Rev. B* **99** 180401
- [72] Guo J, Zhao X, Ohira-Kawamura S, Ling L, Wang J, He L, Nakajima K, Li B, Zhang Z 2020 *Phys. Rev. Mater.* **4** 064410
- [73] Bordelon M M, Liu C, Posthuma L, Sarte P M, Butch N P, Pajerowski D M, Banerjee A, Balents L, Wilson S D 2020 *Phys. Rev. B* **101** 224427
- [74] Nuttall K M, Suggs C Z, Fischer H E, Bordelon M M, Wilson S D, Frandsen B A 2023 *Phys. Rev. B* **108** L140411
- [75] Baenitz M, Schlender P, Sichelschmidt J, Onyikienko Y A, Zangeneh Z, Ranjith K M, Sarkar R, Hozoi L, Walker H C, Orain J C, Yasuoka H, van den Brink J, Klauss H H, Inosov D S, Doert T 2018 *Phys. Rev. B* **98** 220409
- [76] Sichelschmidt J, Schlender P, Schmidt B, Baenitz M, Doert T 2019 *J. Phys. Condens. Matter* **31** 205601
- [77] Sarkar R, Schlender P, Grinenko V, Haeussler E, Baker P J, Doert T, Klauss H H 2019 *Phys. Rev. B* **100** 241116
- [78] Li N, Xie M T, Huang Q, Zhuo Z W, Zhang Z, Choi E S, Wang Y Y, Liang H, Sun Y, Wu D D, Li Q J, Zhou H D, Chen G, Zhao X, Zhang Q M, Sun X F 2024 *Phys. Rev. B* **110** 224414
- [79] Ranjith K M, Luther S, Reimann T, Schmidt B, Schlender

- P, Sichelschmidt J, Yasuoka H, Strydom A M, Skourski Y, Wosnitza J, Kühne H, Doert T, Baenitz M 2019 *Phys. Rev. B* **100** 224417
- [80] Luther S, Ranjith K M, Doert T, Wosnitza J, Kühne H, Baenitz M 2024 *Phys. Rev. B* **110** 214440
- [81] Zhang Z, Ma X, Li J, Wang G, Adroja D T, Perring T P, Liu W, Jin F, Ji J, Wang Y, Kamiya Y, Wang X, Ma J, Zhang Q 2021 *Phys. Rev. B* **103** 035144
- [82] Zhang Z, Li J, Xie M, Zhuo W, Adroja D T, Baker P J, Perring T G, Zhang A, Jin F, Ji J, Wang X, Ma J, Zhang Q 2022 *Phys. Rev. B* **106** 085115
- [83] Dai P L, Zhang G, Xie Y, Duan C, Gao Y, Zhu Z, Feng E, Tao Z, Huang C L, Cao H, Podlesnyak A, Granroth G E, Everett M S, Neufeld J C, Voneshen D, Wang S, Tan G, Morosan E, Wang X, Lin H Q, Shu L, Chen G, Guo Y, Lu X, Dai P 2021 *Phys. Rev. X* **11** 021044
- [84] Jia Y T, Gong C S, Liu Y X, Zhao J F, Dong C, Dai G Y, Li X D, Lei H C, Yu R Z, Zhang G M, Jin C Q 2020 *Chin. Phys. Lett.* **37** 097404
- [85] Zhang Z, Yin Y, Ma X, Liu W, Li J, Jin F, Ji J, Wang Y, Wang X, Yu X, Zhang Q 2020 [arXiv: 2003.11479 \[cond-mat.supr-con\]](#)
- [86] Guo L, Yang X F, Cheng E J, Pan B L, Zhu C C, Li S Y 2023 *Acta Phys. Sin.* **72** 157401 (in Chinese) [郭琳, 杨小帆, 程二建, 泮炳霖, 朱楚楚, 李世燕 2023 *物理学报* **72** 157401]
- [87] Xu Y, Sheng Y, Yang Y F 2022 *npj Quantum Mater.* **7** 21
- [88] Häußler E, Sichelschmidt J, Baenitz M, Andrade E C, Vojta M, Doert T 2022 *Phys. Rev. Mater.* **6** 046201
- [89] Pritchard Cairns L, Day R, Haley S, Maksimovic N, Rodriguez J, Taghinejad H, Singleton J, Analytis J 2022 *Phys. Rev. B* **106** 024404
- [90] Lyu Y, Pritchard Cairns L, Rodriguez J, Liu C, Ng K, Singleton J, Analytis J G 2025 *Phys. Rev. X* **15** 041035
- [91] Grubler F, Hemmida M, Bachus S, Skourski Y, Krug von Nidda H A, Gegenwart P, Tsirlin A A 2023 *Phys. Rev. B* **107** 224416
- [92] Xing J, Sanjeeva L D, Kim J, Stewart G R, Podlesnyak A, Sefat A S 2019 *Phys. Rev. B* **100** 220407
- [93] Xie T, Eberharter A A, Xing J, Nishimoto S, Brando M, Khanenko P, Sichelschmidt J, Turrini A A, Mazzone D G, Naumov P G, Sanjeeva L D, Harrison N, Sefat A S, Normand B, Läuchli A M, Podlesnyak A, Nikitin S E 2023 *npj Quantum Mater.* **8** 1
- [94] Xing J, Sanjeeva L D, Kim J, Stewart G, Du M H, Reboledo F A, Custelcean R, Sefat A S 2019 *ACS Mater. Lett.* **2** 71
- [95] Pocs C A, Siegfried P E, Xing J, Sefat A S, Hermele M, Normand B, Lee M 2021 *Phys. Rev. Res.* **3** 043202
- [96] Sereika R, Xu X, Wang Y, Yang L, Zhang D, Chariton S, Xing J, Sefat A, Vohra Y K, Bi W 2023 *Phys. Rev. B* **108** 174106
- [97] Khattar B, Ali A, Isobe M, Singh Y 2025 *Phys. Rev. B* **112** 174405
- [98] Fujii T, Pillaca M, Bärthel F, Sichelschmidt J, Luther S, Rosner H, Strydom A M, Wosnitza J, Kühne H, Doert T, Baenitz M 2025 *Phys. Rev. B* **112** 024426
- [99] Dissanayaka Mudiyansele R S, Wang H, Vilella O, Mourigal M, Kotliar G, Xie W 2022 *J. Am. Chem. Soc.* **144** 11933
- [100] Zhang W, Cao J, Wang L, Xia Z, Wang Z, Zhao J, Fu Z, Ouyang Z 2025 *J. Appl. Phys.* **137** 093905
- [101] Pan F, Sun S, Kolesnikov A I, Stone M B, Huang J, Xu D, Shang C, Shi B, Gui X, Sun Z, Wang J, Liu J, Zhang H, Liu Z, Cheng P 2024 *Phys. Rev. B* **110** 174448
- [102] Arh T, Sana B, Pregelj M, Khuntia P, Jagličić Z, Le M D, Biswas P K, Manuel P, Mangin-Thro L, Ozarowski A, Zorko A 2022 *Nat. Mater.* **21** 416
- [103] Šibav L, Lozinšek M, Jagličić Z, Arh T, Khuntia P, Zorko A, Dragomir M 2025 *Cryst. Growth Des.* **25** 4646
- [104] Zhang X T, Gao Y H, Chen G 2024 *Phys. Rep.* **1070** 1
- [105] Xiang Q, Li X, Guo X, Behnia K, Zhu Z 2026 *npj Quantum Mater.* **11** 40
- [106] Laurell P, Scheie A, Dagotto E, Tennant D A 2025 *Adv. Quantum Technol.* **8** 2400196
- [107] Iaconis J, Liu C, Halász G B, Balents L 2018 *SciPost Phys.* **4** 003

SPECIAL TOPIC—Quantum magnetism

Quantum spin liquid ground states in rare-earth
triangular-lattice spin systems*XIE Mingtai¹⁾²⁾ ZHANG Zheng^{1)†} ZHANG Qingming¹⁾²⁾1) (*Beijing National Laboratory for Condensed Matter Physics, Institute of Physics,
Chinese Academy of Sciences, Beijing 100190, China*)2) (*School of Physical Science and Technology, Lanzhou University, Lanzhou 730000, China*)

(Received 20 April 2026; revised manuscript received 18 May 2026)

Abstract

Quantum spin liquids (QSLs) are exotic quantum many-body states in frustrated magnets that evade conventional magnetic order down to absolute zero temperature, featuring long-range quantum entanglement, fractionalized excitations, and emergent gauge structures. The triangular lattice serves as a canonical platform for studying QSLs; however, the simplest spin-1/2 nearest-neighbor Heisenberg triangular-lattice antiferromagnet possesses a 120° Néel ordered ground state rather than a spin liquid. Realizing QSLs in real triangular-lattice materials therefore relies on additional mechanisms such as next-nearest-neighbor exchange, XXZ exchange anisotropy, and bond-dependent anisotropic interactions induced by strong spin-orbit coupling. This article reviews the theoretical foundations, candidate materials, and recent experimental progress on rare-earth triangular-lattice QSLs, with a focus on Yb³⁺-based compounds whose effective pseudospin-1/2 description and high-quality single-crystal availability make them the most extensively studied systems to date. We first examine YbMgGaO₄, where inelastic neutron scattering revealed broad continuum excitations suggestive of fractionalization, but Mg²⁺/Ga³⁺ site disorder and spin-glass-like behavior in the sister compound YbZnGaO₄ have cast doubt on its intrinsic QSL candidacy. We then turn to the NaYbCh₂ (Ch = O, S, Se) family, which eliminates such mixed-valence disorder at the structural level. Thermodynamic and local-probe measurements consistently show the absence of long-range order and spin freezing; single-crystal inelastic neutron scattering on NaYbSe₂ has identified spinon-type continuum excitations in a structurally clean setting. The chemical substitution O→S→Se provides a clean tuning pathway across different exchange regimes. Comparisons with magnetically ordered analogues KYbO₂, KYbSe₂, and CsYbSe₂ through spin-wave fitting supply quantitative constraints on the effective Hamiltonians. Current evidence indicates that the NaYbCh₂ family represents one of the most promising rare-earth triangular-lattice QSL candidate platforms to date.

Keywords: quantum spin liquid, triangular lattice, rare-earth magnets**DOI:** 10.7498/aps.75.20260552**CSTR:** 32037.14.aps.75.20260552

* Project supported by the National Key Research and Development Program of China (Grant Nos. 2022YFA1402700, 2024YFA1408300), the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 12274186), the Project of Synergetic Extreme Condition User Facility, China (SECUF, <https://estr.cn/31123.02.SECUF>), and the Lanzhou High-level Talent Fund, China.

† Corresponding author. E-mail: zhangzheng@iphy.ac.cn

稀土三角晶格自旋系统中的量子自旋液体基态

谢铭泰 张政 张清明

Quantum spin liquid ground states in rare-earth triangular-lattice spin systems

XIE Mingtai ZHANG Zheng ZHANG Qingming

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 75, 190708 (2026) DOI: 10.7498/aps.75.20260552

CSTR: 32037.14.aps.75.20260552

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.7498/aps.75.20260552>

当期内容 View table of contents: <http://wulixb.iphy.ac.cn>

您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

三角晶格自旋液体候选材料 NaYbSe_2 在高压下的超导转变

Pressure-induced superconductivity in triangular lattice spin liquid candidate NaYbSe_2

物理学报. 2023, 72(15): 157401 <https://doi.org/10.7498/aps.72.20230730>

无序三角晶格中硬核玻色子的超玻璃相

Superglass phase of hard-core bosons on a disordered triangular lattice

物理学报. 2026, 75(14): 157401 <https://doi.org/10.7498/aps.75.20260225>

μ SR实验进展与缪子源发展趋势

μ SR experimental progress and trends of developing muon facilities

物理学报. 2024, 73(19): 197601 <https://doi.org/10.7498/aps.73.20240940>

基于稀土金属 $\text{Dy/Pt}/[\text{Co/Pt}]_3$ 磁性多层膜的自旋轨道矩

Investigation of spin-orbit torques in rare-earth $\text{Dy/Pt}/[\text{Co/Pt}]_3$ magnetic multilayers

物理学报. 2025, 74(13): 137203 <https://doi.org/10.7498/aps.74.20250186>

微纳尺度稀土掺杂晶体的量子相干性能及其应用研究进展

Research progress of quantum coherence performance and applications of micro/nano scale rare-earth doped crystals

物理学报. 2023, 72(12): 120302 <https://doi.org/10.7498/aps.72.20222166>

三角形结构中磁涡旋自旋波模式的研究

Study of magnetic vortex spin wave mode in triangular structures

物理学报. 2022, 71(19): 194703 <https://doi.org/10.7498/aps.71.20221128>