

高压比热研究量子磁性相变

量子磁性系统的相变研究近年来在理论上进展迅速，从具有拓扑序的量子自旋液体 [1]到超越朗道-金兹伯格对称性破缺理论的去禁闭量子临界点[2] 以及具有涌现连续对称性的新型一级相变[3]，新的结果不断出现。这些理论发展对实验研究提出了新的需求和挑战，在材料的制备方面，如阻挫磁体材料，在生长和合成上比常规材料更加困难；在物性测量方面，理论上预测的新物态往往是在低温、高压、强磁场等极端条件下才能出现，而综合极端条件下的物性测量，如本研究采用的高压比热测量，在实验技术上具有挑战性。因而，关于量子磁性系统的新的实验研究结果无论对于理论还是实验研究都具有重要的意义。

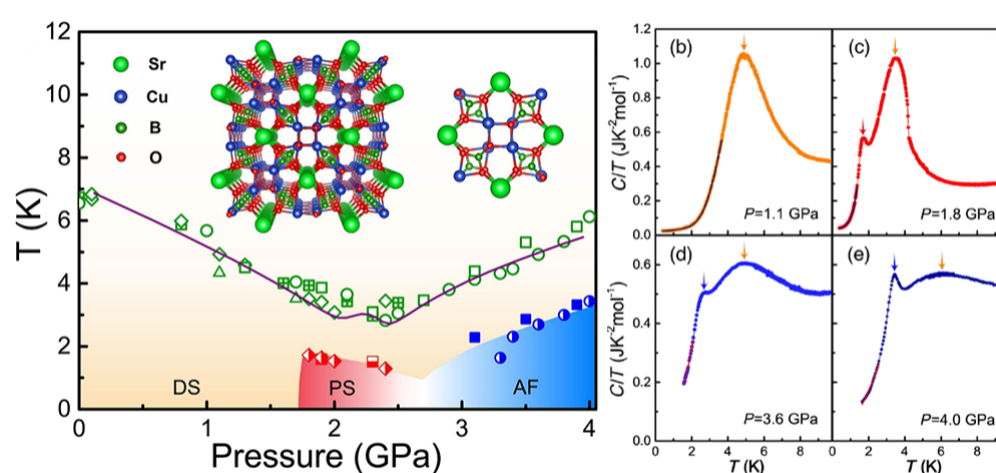


图1. (a) 由高压比热测量确定的阻挫磁体材料 $\text{SrCu}_2(\text{BO}_3)_2$ 的压力-温度相图。(b), (c), (d), (e) 为不同压力下的比热测量的结果，其中黄色箭头指示 C/T 上的鼓包对应相图 (a) 中绿色标识，代表反铁磁相互作用的起始温度。(c), (d), (e) 中更低温度的箭头所示温度分别为相图中二聚体 PS 态和反铁磁 AF 态的相变温度。

近日，中国科学院物理研究所/北京凝聚态物理国家研究中心孙力玲研究员、郭静副研究员、孟子杨研究员、李世亮研究员等与中科院物理所/波士顿大学Anders W. Sandvik（善德伟）教授和俄罗斯科学院高压物理研究所Vladimir A. Sidorov教授组成的国际合作团队，利用高压下比热测量的方法，研究了著名的阻挫磁体材料 $\text{SrCu}_2(\text{BO}_3)_2$ ，第一次完整的获得了该系统随压力的变化从二聚体态 (Dimer-singlet state, DS) 到四聚体态 (plaquette-singlet state, PS) 再到反铁磁态 (antiferromagnet, AF) 的基态相图，填补了20多年来对该材料研究的空白。该研究结果为理解不同基态之间的相变，尤其是四聚体态与反铁磁态之间可能存在的去禁闭量子相变提供了实验观测事实，为进一步的理论研究提供了动力。这项工作发表在最近一期 Physical Review Letters 上 [4]。

$\text{SrCu}_2(\text{BO}_3)_2$ 是从90年代就开始研究的阻挫磁体材料 [5]，在常压下材料中的 Cu^{2+} 离子因为反铁磁相互作用形成自旋单态 (dimer-singlet)，整个系统由于 inter-dimer 反铁磁相互作用强于 intra-dimer 反铁磁相互作用，处于这些自旋单态的直积态，即没有磁性的二聚体顺磁状态。如此的状态也正好是理论上著名的 Shastry-Sutherland 阻挫磁体模型的准二维材料实现 [6]。后续的实验和理论研究发现， $\text{SrCu}_2(\text{BO}_3)_2$ 在压力下，inter- 和 intra-dimer 相互作用的相对大小可以发生变化，使得二聚体态有可能经过相变进入四聚体态，即晶格中四个最近邻的自旋形成 plaquette singlet，系统发生平移对称性破缺。但是实现探测四聚体态所需要的压力实验手段不仅十分有限，而且对实验观测所需的压力范围在技术上十分困难。到目前为止只有稀少的核磁共振 [7] 和中子散射 [8] 在2 GPa附近进行过测量，而且这些测量往往只在一个压力点进行，整个系统如何随着压力的增加从二聚体态到四聚体态和更大压力状态的连续变化过程尚未澄清和发现。高压比热测量是探测量子态及其相关竞争现象最直接和有效的测量方法。但由于要测量样品的尺寸远比常压小，因此在技术上充满挑战。

2018年在孟子杨研究员和善德伟教授的建议下，在物理所组成了集材料制备、物性测量及理论研究为一体的研究团队。首先，由李世亮研究员和博士生洪文山制备出了高质量的 $\text{SrCu}_2(\text{BO}_3)_2$ 阻挫磁体材料单晶。然后，孙力玲研究员与郭静副研究员及Sidorov教授等利用经过多年的努力研制出的可以在较大压力范围内进行材料比热测量的实验平台，对该材料进行了系统的研究，突破了量子相变研究比热测量技术壁垒。研究发现，在压力小于 1.8 GPa 时系统处于 DS 态，1.8 GPa ~ 2.5 GPa 时进入 PS 态，而当压力大于 ~ 2.5 GPa 之后系统进入全新的反铁磁态。值得一提的是，此处的反铁磁转变温度在 ~ 4 K 的作用能量尺度，与 C/T 中看到的鼓包和系统本征反铁磁相互作用的能量尺度吻合，纠正了之前文献中认为高压下反铁磁转变温度高达 ~ 100 K 这种不自洽的认识。

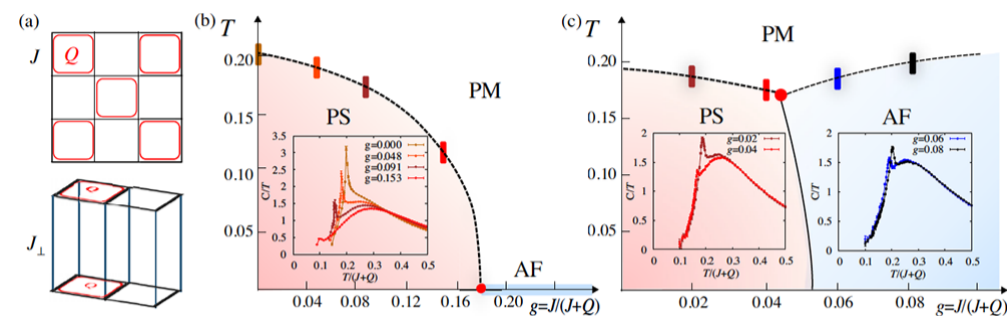


图2：为配合 $\text{SrCu}_2(\text{BO}_3)_2$ 实验结果，研究人员设计了二维和三维 checkerboard J-Q 自旋模型，并运用大规模量子蒙特卡洛模型计算了该模型在不同参数下的热力学行为。如 (c) 所示，比热计算的结果在 PS 和 AF 相中，与实验观测结果高度吻合。

为了更好地解释 $\text{SrCu}_2(\text{BO}_3)_2$ 实验结果，善德伟教授，孟子杨研究员，中科院物理所研究生孙光宇、博士后马女森等人，设计了二维和三维 checkerboard J-Q 自旋模型来研究实验观测中从 PS 态到 AF 态的相变，并运用大规模量子蒙特卡洛模型计算了该模型在不同参数下的热力学行为。如图2 (c) 所示，在三维的 Checkerboard J-Q 模型计算中，PS 态和 AF 态中的 C/T 数据，都具有随着温度的降低首先出现鼓包，然后出现热力学相变对应的小峰的信号，与实验观测吻合。从理论上讲，本研究的实验结果为下一步详细研究 PS 态到 AF 态之间的量子相变，和可能出现的去禁闭量子临界现象、分数化元激发等等量子物质科学新范式的代表性行为的材料实现，提供了切实的支持。

该项研究得到了科技部、国家自然科学基金、中科院B类先导专项和松山湖材料实验室以及香港特别行政区研究资助局的支持。研究工作中进行的大规模量子蒙特卡洛并行计算，在中科院物理所量子模拟科学中心、国家超级计算天津中心的天河一号平台、国家超算广州中心天河二号平台上进行，并得到相关单位有力支持和配合。

相关工作链接：<https://journals.aps.org/prl/pdf/10.1103/PhysRevLett.124.206602>

参考文献：

- [1] Quantum Spin Liquid with Even Ising Gauge Field Structure on Kagome Lattice, Yan-Cheng Wang, Xue-Feng Zhang, Frank Pollmann, Meng Cheng, Zi Yang Meng, Phys. Rev. Lett. 121, 057202 (2018)
- [2] Dynamical Signature of Fractionalization at the Deconfined Quantum Critical Point, Nvsen Ma, Guang-Yu Sun, Yi-Zhuang You, Cenke Xu, Ashvin Vishwanath, Anders W. Sandvik, Zi Yang Meng, Phys. Rev. B 98, 174421 (2018) Editors' Suggestion
- [3] Symmetry-enhanced discontinuous phase transition in a two-dimensional quantum magnet, Bowen Zhao, Phillip Weinberg, Anders W. Sandvik, Nature Physics 15, 678-682 (2019)
- [4] Quantum Phases of $\text{SrCu}_2(\text{BO}_3)_2$ from High-Pressure Thermodynamics, Jing Guo, Guangyu Sun, Bowen Zhao, Ling Wang, Wenshan Hong, Vladimir A. Sidorov, Nvsen Ma, Qi Wu, Shiliang Li, Zi Yang Meng, Anders W. Sandvik, and Liling Sun, Phys. Rev. Lett. 124, 206602 (2020)
- [5] Exact Dimer Ground State and Quantized Magnetization Plateaus in the Two-Dimensional Spin System $\text{SrCu}_2(\text{BO}_3)_2$, H. Kageyama, K. Yoshimura, R. Stern, N. V. Mushnikov, K. Onizuka, M. Kato, K. Kosuge, C. P. Slichter, T. Goto, and Y. Ueda, Phys. Rev. Lett. 82, 3168 (1999)

[6] Exact ground state of a quantum mechanical antiferromagnet,

B.Sriram Shastry, Bill Sutherland,

Physica (Amsterdam) 108B, 1069 (1981)

[7] A Novel Ordered Phase in $\text{SrCu}_2(\text{BO}_3)_2$ under High Pressure,

Takeshi Waki, Koichi Arai, Masashi Takigawa, Yuta Saiga, Yoshiya Uwatoko, Hiroshi Kageyama, and Yutaka Ueda,

J. Phys. Soc. Jpn. 76, 073710 (2007)

[8] 4-spin plaquette singlet state in the Shastry-Sutherland compound $\text{SrCu}_2(\text{BO}_3)_2$,

M. Zayed et al.,

Nat. Phys. 13, 962 (2017).

[PRL 124, 206602 \(2020\).pdf](#)

[公开课](#) [微信](#) [联系我们](#) [友情链接](#) [所长信箱](#) [违纪违法举报](#)



中国科学院
CHINESE ACADEMY OF SCIENCES