

博士学位论文

几何阻挫重费米子体系 CePdAl 中的量子临界物性研究



2020年9月

Quantum critical phenomena in geometrically frustrated

heavy-fermion compound CePdAl

A dissertation submitted to

University of Chinese Academy of Sciences

in partial fulfillment of the requirement

for the degree of

Doctor of Philosophy

in Condenced Matter Physics

By

Zhao Hengcan Supervisor: Professor Sun Peijie

Institute of Physics, Chinese Academy of Sciences

September 2020

中国科学院大学

研究生学位论文原创性声明

本人郑重声明: 所呈交的学位论文是本人在导师的指导下独立进行研究工作 所取得的成果。尽我所知, 除文中已经注明引用的内容外, 本论文不包含任何其 他个人或集体已经发表或撰写过的研究成果。对论文所涉及的研究工作做出贡献 的其他个人和集体, 均已在文中以明确方式标明或致谢。

中国科学院大学

学位论文授权使用声明

本人完全了解并同意遵守中国科学院有关保存和使用学位论文的规定,即中 国科学院有权保留送交学位论文的副本,允许该论文被查阅,可以按照学术研究 公开原则和保护知识产权的原则公布该论文的全部或部分内容,可以采用影印、 缩印或其他复制手段保存、汇编本学位论文。

涉密及延迟公开的学位论文在解密或延迟期后适用本声明。

作者签名: 赵恒灿 导师签名: 3130元 日期: 2020.08.07 日期: 2020.08.10

摘要

强关联电子体系是一大类多体物理效应发挥重要作用的量子材料,包括高温 超导、莫特绝缘体、重费米子材料等,是凝聚态物理中最前沿的研究领域之一。 其中,重费米子材料一般为含有稀土或者锕系元素的金属间化合物。这类材料中, 稀土或者锕系元素中未满壳层的f电子表现出局域磁矩,大量的局域磁矩周期性 排列形成晶格结构,每个格点上的局域磁矩同时发生类似于单磁性杂质中的近藤 效应,形成近藤晶格体系。1977年,Doniach提出了理解重费米子材料基态物性 的基本框架(Doniach相图):考虑到重费米子材料中跟f电子与传导电子的耦合强 度有关的两种相互作用,即近藤效应和RKKY间接交换相互作用的竞争,近藤晶 格可以表现出两种不同的基态。当RKKY间接交换相互作用起主导作用时,体系 进入反铁磁有序态;相反,当近藤效应起主导作用时,局域磁矩被屏蔽,形成费 米液体态。当两者的能量尺度大致相当时,反铁磁有序温度被抑制到绝对零温, 形成反铁磁有序到费米液体的量子临界点,重费米子体系中的量子临界点和非费 米液体行为甚至非常规超导具有密切的关系。

另一方面,自旋阻挫效应是绝缘的量子磁性材料中的重要研究方向。由于局 域自旋的排列形成具有几何阻挫的结构,当最近邻自旋交换相互作用不能同时满 足体系能量最低的条件时,其基态会存在多个简并态。不同简并态之间的量子涨 落可能导致自旋液体等奇异量子态的产生。一般而言,由于传导电子的存在以及 较大的总角动量量子数,基于稀土或锕系元素的近藤体系不是阻挫量子磁性的良 好研究对象。但是,近年来的理论和一些初步的实验表明,当近藤晶格具有几何 阻挫结构时,阻挫导致的量子涨落会影响近藤效应和RKKY相互作用的竞争,为 调控该类材料的基态提供了一个新的维度。相比于具有阻挫结构的莫特绝缘体, 阻挫重费米子材料中相互竞争的能量尺度都很低,非常适合通过压力、磁场等开 展量子调控研究。在重费米子体系中引入自旋阻挫后,基态相图将以什么形式出 现,是否会导致金属自旋液体态,以及如何来理解阻挫影响下的复杂相图,是重 费米子领域新的物理问题,也是本论文的主要研究内容。

CePdAl 是非常少见的含有几何阻挫结构(变形的 Kagome 格子)的重费米

Ι

子体系。该材料在 2.7 K 表现出反铁磁有序,但是中子衍射发现仅仅 2/3 的 Ce 原子参与了磁有序的产生,另外 1/3 可能被近藤屏蔽,尽管所有 Ce 原子占据相同的格点。奇特的部分磁有序行为被认为是该材料受自旋阻挫影响的直接证据之一。本课题中,我们在极低温下通过压力和磁场等非热力学调控参量对 CePdAl 的量子临界行为进行研究,取得了以下研究成果:

一、CePdAl 在阻挫影响下的量子临界相的发现

在有限压力和磁场的调控下,CePdAl 的部分磁有序可以被连续的抑制到零 温。在经历反铁磁量子临界点后,该材料的基态并没有立即形成费米液体,而是 形成了一个由几何阻挫诱导的、在很宽的磁场和压力区间内存在的量子临界相。 这是一个介于具有小费米面的反铁磁有序态和具有大费米面的费米液体态之间 的量子顺磁相,在电阻率和比热上都表现出非费米液体行为,而在交流磁化率上 表现出一定的自旋关联特征。尽管类似的量子临界相行为之前在化学参杂的量子 临界体系中也有迹象,对于CePdAl 的实验结果第一次明确了自旋阻挫和量子临 界相的密切关系。阻挫重费米子材料中量子临界相的发现突破了传统重费米子材 料 Doniach 相图的理论框架,为探索和理解关联电子体系中的新奇量子态提供了 新的途径。

二、CePdA1中的异常量子临界软化行为的发现

极端条件下的超声波探测技术可以通过改变晶格的局域对称性形变来探测 固体材料中电子态和自旋的状态等。为了进一步理解自旋阻挫和量子临界行为的 关系,在研究 CePdAl 的量子临界物性的过程中,我们发展了超声波测量弹性常 数的实验手法,并测量了该材料在极低温和磁场下的弹性常数。初步实验结果显 示,仅仅当声波振动方向在阻挫 Kagome 面的时候(此时超声波引起的局域形变 可以直接影响阻挫程度),对应于量子顺磁相我们可以观测到一个很强的弹性软 化行为。该结果说明,CePdAl 中的量子顺磁相和自旋阻挫具有直接的关系;在 与其相对应的相空间内,晶格表现出异常软化。

关键词: 重费米子金属, 几何阻挫, 量子临界相

II

Abstract

Strong correlated electron systems are a large class of quantum materials where quantum many-body physics plays a crucial role. There include high temperature superconductors, Mott insulators, and heavy-fermion materials etc., and form one of the most cutting-edge research fields in condensed matter physics. Among them, heavyfermion materials are intermetallic compounds usually containing rare earth or actinide elements. In heavy-fermion compounds, the *f*-electrons in rare earth or actinides show local magnetic moments, and a large number of local magnetic moments arranged periodically form a Kondo lattice. The local magnetic moment on each lattice site takes part in the Kondo effect simultaneously as that in a single magnetic impurity. In 1977, Doniach proposed the basic framework (Doniach phase diagram) for understanding the ground state of heavy fermion materials. Considering the two basic interactions related to the coupling strength of *f*-electrons and conduction electrons in heavy-fermion materials, namely, the competition between Kondo effect and RKKY interaction, Kondo lattice can show two different ground States. When RKKY interaction plays a leading role, the system enters an antiferromagnetic phase; on the contrary, when Kondo effect plays a leading role, the local magnetic moment is screened and the system forms Fermi liquid state. When the energy scales of the two interactions are approximately the same, the antiferromagnetic order is suppressed to absolute zero temperature, forming a quantum critical point. The existence of quantum critical point is closely related to non-Fermi liquid behavior and even unconventional superconductivity.

On the other hand, spin frustration effect is an important research direction of insulating quantum magnetic materials. Due to the existence of geometric frustration, when the nearest neighbor spin exchange interaction at all sites cannot meet the minimum energy condition at the same time, there will be a large degeneracy in the ground state. The quantum fluctuations between different degenerate states may form strange quantum states such as spin liquid. Due to the existence of conducting electrons and the large total angular momentum quantum number, Kondo systems are not

expected to be good candidates of frustrated quantum magnets. However, recent theory and some preliminary experiments show that when the Kondo lattice has a geometrically frustrated structure, the quantum fluctuations caused by the frustration will affect the competition between the Kondo effect and RKKY interaction, and interesting phenomena may occur in the ground state of heavy-fermion system, such as metal spin liquid state. Compared with Mott insulator with frustrated structure, the competing energy scales of frustrated heavy-fermion materials are very low, and are suitable for ground-state manipulation through pressure and magnetic field. By introducing spin frustration into heavy-fermion system, what kind of phase diagram will appear, and how to understand this new phase diagram are new physical problems in the field of heavy-fermions and form the main topic of this paper.

CePdAl is a rare heavy-fermion metal with geometrically frustrated structure (distorted Kagome lattice). The material exhibits antiferromagnetic order at 2.7 K, but neutron diffraction shows that only 2/3 of Ce atoms participate in the formation of magnetic order, and the other 1/3 may be screened by Kondo effect, although all Ce atoms occupy the same lattice site. The behavior of partial magnetic order is considered to be the direct manifestation of spin frustration. In this study, we control the ground state of CePdAl by means of pressure and magnetic field, and study the quantum critical behavior of CePdAl in detail. The research results are as follows:

1: Quantum critical phase of CePdAl under the influence of frustration

Under finite pressure and magnetic field, the partial magnetic order of CePdAl can be continuously suppressed to zero temperature. After that, the ground state does not enter the Fermi liquid phase immediately, but forms a quantum critical phase, which is shown to be induced by geometric frustration in a wide range of magnetic field and pressure. This intermediate phase is a quantum paramagnetic phase between the antiferromagnetic order and the Fermi liquid state. It shows non-Fermi liquid behavior in the resistivity and specific heat, but reveals antiferromagnetic spin correlation in AC susceptibility. Although similar behavior has been shown in the doping system before, our work demonstrates the close relationship between spin frustration and the quantum critical phase for the first time. The observation of a quantum critical phase go beyonds the theoretical framework of the traditional heavy-fermion material, i.e., the Doniach phase diagram. More theoretical and experimental studies are needed to understand this novel quantum state.

2: Quantum critical elastic softening behavior in CePdAl

Elasticity probed by ultrasonic propagation can detect the response of magnetic and electronic states by changing the local symmetry deformation of the lattice. In order to further understand the relationship between spin frustration and quantum critical behavior, we have developed an experimental method to measure the elastic constants of CePdAl and then measured the elastic constants of CePdAl in the quantum critical region. It is found that a strong elastic softening behavior can be observed only when the acoustic vibration direction is in the frustrated Kagomé plane. Corresponding to the quantum paramagnetic phase, a strong elastic softening behavior can be observed. This result further indicates that the quantum paramagnetic phase in CePdAl is directly related to spin frustration. The related research is still in progress.

Key Words: Heavy-fermion metal, Geometrical frustration, Quantum critical phase

目	录
_	

摘 要		I
Abstract.		III
日 录		VII
图表目录	₹	XI
第1章	绪论	1
1.1 引	言	1
1.2 重	费米子体系的研究背景	2
1.2.1	非常规超导:以 CeCu2Si2和 UBe13 为例	3
1.2.2	量子临界点	4
1.3 自治	旋阻挫体系的研究背景	6
1.3.1	自旋阻挫的概念	6
1.3.2	实验上的判据	8
1.3.3	阻挫磁体的基态	9
1.4 几位	何阻挫重费米子体系的研究背景	12
1.4.1	近藤体系中几何阻挫的特点	12
1.4.2	几个典型的阻挫近藤体系	14
1.5 本	论文中所用的主要理论	17
1.5.1	从单杂质的近藤效应到重费米子金属中的近藤格子	17
1.5.2	近藤格子模型中的两类量子临界点	19
1.5.3	重费米子体系中的几何阻挫	21
1.6 本	论文拟解决的科学问题	23
第2章	CePdAl 的研究背景以及基本物性	25
2.1 Ce	PdA1 的研究背景	25
2.1.1	部分磁有序结构	25
2.1.2	初步的磁场和压力调控	29
2.2 Ce	PdA1的基本物性	32
第3章	实验方法	39
3.1 极	端环境实验条件	39
3.1.1	极低温	39

3.1.2	强磁场	41
3.1.3	高压	
3.2 物	性测量方法	43
3.2.1	电输运测量	
3.2.2	交流磁化率测量	44
3.2.3	超声波测量	45
第4章	磁场诱导的量子顺磁相	47
4.1 引	言	47
4.2 实	验结果	48
4.2.1	磁场下的电输运性质	
4.2.2	磁场下的磁性性质	53
4.2.3	磁场下的热力学性质	55
4.2.4	温度-磁场相图以及量子顺磁态	56
4.3 结:	果讨论	58
4.4 本語	章小结	58
第5章	压力诱导的量子临界相	61
5.1 引	言	61
5.2 压	力诱导的量子临界相	62
5.2.1	静水压力下的电输运性质	
5.2.2	静水压力下的磁性性质	65
5.2.3	化学压力下的热力学性质	66
5.2.4	温度–压力相图以及压力诱导的量子临界相	67
5.3 压	力和磁场诱导的量子临界相	68
5.3.1	压力和磁场下的电输运和磁性性质(P < P _{c1})	
5.3.2	压力和磁场下的电输运和磁性性质(Pc1 < P < Pc2)	73
5.3.3	压力下的温度磁场相图以及量子临界相	
5.4 结:	果讨论	84
5.5 本	章小节	85
第6章	CePdAl 中的量子临界软化行为	
6.1 引	言	87
6.2 几	何阻挫诱导的弹性各向异性	87

6.2.2	T=2K时弹性常数的磁场变化	
6.2.3	晶格弹性的各向异性	90
6.3 最	格软化在横波模式上的表现	93
6.4 本	章小节	94
第7章	总结与展望	97
参考文献	伏	
致 谢		
作者简质	历及攻读学位期间发表的学术论文与研究成果	

图表目录

图 1.1	CeCu _{6-x} Au _x 中 Au 的掺杂量 x 和温度 T 的相图	4
图 1.2	YbRh ₂ Si ₂ 在磁场中的相图	5
图 1.3	CePd ₂ Si ₂ 在压力下的相图	6
图 1.4	一些常见的几何阻挫结构	7
图 1.5	三角格子中自旋处于阻挫状态的六种简并态	8
图 1.6	没有阻挫和存在阻挫情况下居里-外斯温度与磁有序温度的比较	9
图 1.7	折衷的非共线结构1	0
图 1.8	YbAgGe的结构图1	4
图 1.9	YbAgGe 的温度-磁场相图 (<i>H</i> // a)1	5
图 1.10	YbAgGe 在低温下随温度变化的比热(<i>H</i> //ab)1	5
图 1.11	YbRh ₂ (Si _{0.95} Ge _{0.05}) ₂ 在磁场下的相图(B//c)1	6
图 1.12	Pr ₂ Ir ₂ O ₇ 中随温度变化的直流磁化率(B=20mT//[111])1	6
图 1.13	近藤效应和近藤晶格效应1	8
图 1.14	两个局域磁矩之间的 RKKY 相互作用示意图1	8
图 1.15	Doniach 相图1	9
图 1.16	两类量子临界点的示意图2	0
图 1.17	在近藤格子模型中考虑阻挫存在情况下的示意相图2	2
图 2.1	CePdAl的晶格结构和磁结构2	6
图 2.2	CePdAl 在 30 mK 到 15 K 的温度区间内随温度变化的 T ₁ ⁻¹ 2	7
图 2.3	CePdAl 中磁性波矢和局域磁矩随温度的变化2	8
图 2.4	低温区域内 CePdAl 的磁化曲线和磁阻3	0
图 2.5	CePdAl 中不同压力下 C/T 随温度的变化	1
图 2.6	CePdA1中的温度-压力相图	1
图 2.7	(a) Kagomé 格子 (b) CePdAl 的三维结构图3	2
图 2.8	CePdAl 单晶在(001) 晶面上的 x 射线衍射峰	3
图 2.9	c 轴和 ab 面内随温度变化的直流磁化率3	4
图 2.10 (b) 低	(a) 2-100 K 温度范围内 CePdAl 的比热 C/T 随温度的平方的变化关系 低温区域内电子比热 C4f/T 和熵随温度的变化	系 5
图 2.11	CePdAl 的电阻率以及电阻率对温度的一阶导数随温度的变化3	6

图 2.12 的变化.	CePdAl 中直流磁化率 χ 和直流磁化率对温度的一阶导数 dχ/dT 随温度
图 3.1	³ He 和 ⁴ He 的混合液的相图
图 3.2	稀释制冷机工作时的流程图40
图 3.3	实验室中稀释制冷机的实物图41
图 3.4	提供静水压力的压力腔实物图42
图 3.5	压力下的交流磁化率上锡的超导相变信号43
图 3.6 和实物	(a)四电极法测量电阻示意图和实物图(b)四电极法测量霍尔示意图 图44
图 3.7	交流磁化率线圈示意图和实物图45
图 3.8	采用相位比较法进行超声波探测的示意图46
图 4.1	金属体系中磁性格点和非磁性格点混合的部分磁有序47
图 4.2 对磁场[(a) CePdAl 在不同温度下随磁场变化的电阻率(b) 不同温度下电阻率的一阶导数(c) 0.1 K 时升降场的电阻率49
图 4.3 温度的	CePdAl 的电阻率(a)和电阻率对温度的一阶导数(b)在不同磁场下随变化51
图 4.4 表示,其	CePdAl 在 4.4 T-7 T 的磁场下随温度变化的电阻率,以双指数的形式来 其中插图是在费米液体区域内的电阻率系数 A 随磁场的变化52
图 4.5 变化	(a) CePdA1 在 0.08 K 到 4 K 之间不同温度下霍尔电阻率 ρ _{xy} 随磁场的
图 4.6 的交流码	(a)CePdAl的交流磁化率的实部在不同温度下随磁场的变化(b)CePdAl 磁化率的实部在不同磁场下随温度的变化54
图 4.7	CePdA1常压下比热在不同磁场下随温度的变化55
图 4.8	日本研究小组的极低温比热测量结果56
图 4.9	CePdAl 在磁场中的相图
图 4.10	CePdAl在4.4T时不同频率的交流磁化率随温度的变化57
图 4.11	德国研究小组关于 CePdAl 的温度-磁场相图58
图 5.1	CePdAl在不同压力下随温度变化的电阻率63
图 5.2 率随温/	两个临界压力点之间不同压力(0.93 GPa, 1.15 GPa 和 1.44 GPa)下电阻 度的变化
图 5.3 随着压力	剩余电阻率 ρ_0 和电阻率系数 $A(非费米液体区域内的电阻系数用A'表示)力的变化,插图为随压力变化的电阻率指数n64$
图 5.4	CePdAl在不同压力下随温度变化的交流磁化率65
图 5.5	CePd _{1-x} Ni _x Al 在不同掺杂量 x 下随温度变化的电子比热
图 5.6	CePdA1 在压力下的相图

图 5.7	$P < P_{c1}$, $T = 100 \text{ mK}$ 时随磁场变化的电阻率和交流磁化率	69
图 5.8	0.82 GPa 时不同磁场下随温度变化的电阻率	70
图 5.9	CePdAl 在 0.82 GPa 时不同磁场下交流磁化率实部随温度的变化	71
图 5.10	P=0.82 GPa 时磁场下的剩余电阻率、电阻率系数和电阻率指	72
图 5.11	Pc1 < P < Pc2 时 100 mK 随磁场变化的电阻率和交流磁化率	73
图 5.12	0.93 GPa 时不同磁场下随温度变化的电阻率	74
图 5.13	CePdAl在 0.93 GPa时不同磁场下交流磁化率实部随温度的变化	75
图 5.14	P=0.93 GPa 时磁场下的剩余电阻率、电阻率系数和电阻率指数	76
图 5.15	1.15 GPa 时不同磁场下随温度变化的电阻率	77
图 5.16	CePdAl在1.15 GPa时不同磁场下交流磁化率实部随温度的变化	78
图 5.17	P=1.15 GPa 时磁场下的剩余电阻率、电阻率系数和电阻率指数	79
图 5.18	1.44 GPa 时不同磁场下随温度变化的电阻率	80
图 5.19	CePdAl在1.44 GPa时不同磁场下交流磁化率实部随温度的变化	81
图 5.20	P=1.44 GPa 时磁场下的剩余电阻率、电阻率系数和电阻率指数	82
图 5.21	CePdAl 在不同静水压力下的温度磁场相图	83
图 5.22	CePdAl 基态上的压力-磁场相图	84
图 5.23	重费米子体系中无阻挫(a)和有阻挫时(b)的量子临界示意相图	86
图 6.1	0T时不同轴向的晶格弹性随温度的变化	88
图 6.2	2K时不同轴向晶格弹性随磁场的变化	89
图 6.3	100 mK 时不同轴向晶格弹性随磁场的变化	90
图 6.4	不同温度下不同轴向上晶格弹性随磁场的变化	92
图 6.5	从不同轴向的晶格弹性上得到的相图	93
图 6.6	不同温度下随磁场变化的晶格弹性和由此得到的相图	94
表 2.1	CePdAl 的基本信息	32
表 2.2	CePdAl 单晶的晶胞参数	33

第1章 绪论

1.1 引言

在含有稀土或者锕系元素的金属化合物中,当稀土或者锕系元素中含有未满 壳层的f电子时,会有局域磁矩存在,这些局域磁矩周期性排列形成近藤晶格体 系。近藤晶格体系中,局域和传导电子能带的杂化会导致在低温下能带发生重整 化,局域磁矩被近藤屏蔽,形成新的准粒子能带。这类准粒子的有效质量可达自 由电子有效质量的1000倍以上,因而称为重电子或重费米子(heavy fermion)^[1-4]。重费米子体系一般情况下是金属,当费米能恰好位于局域和传导电子的杂化 能隙时,可以形成重费米子半导体或近藤半导体,其基态一般是非磁性的。近年 来,对于重费米子体系的研究主要集中在零温附近的量子临界点行为以及其附近 可能存在的重费米子超导,f电子的局域巡游变化过程等。

另一方面, 传统意义上的自旋阻挫效应研究仅仅局限于磁性绝缘体中^[5-8]。例 如, 当三角晶格伊辛自旋系统中自旋之间的相互作用为反铁磁关联时, 三个格点 上的自旋不能同时满足反平行排列, 这种情况导致自旋阻挫发生。此时的自旋态 是高度简并的, 共有六个自旋简并态。当自旋简并态之间存在很强的量子涨落时, 自旋系统不会形成长程磁有序, 而可能进入一种被称为量子自旋液体 (quantum spin liquid)的奇异量子态^[5-8]。这种奇异量子态表现为顺磁性的同时, 又存在长 程的自旋关联, 其激发态是分数量子化的。

近十年来,越来越多的理论和实验表明几何阻挫(geometrical frustration)在 一些特殊的重费米子金属中起着非常重要的作用^[9-12]。这类重费米子金属中的局 域磁矩形成了具有几何阻挫结构的近藤晶格,且局域磁矩之间存在反铁磁相互作 用,被称为几何阻挫重费米子金属。但是重费米子体系中的磁有序是通过传导电 子所媒介的 RKKY 间接相互作用产生,这本身是一个长程相互作用,在一定程 度上弱化阻挫引起的效应。因此,重费米子体系中一旦引入几何阻挫,其基态将 如何变化,是重费米子领域的一个复杂的新问题。

几何阻挫重费米子体系中的研究涉及两大类问题^[12]。一类问题是几何阻挫的 存在对于重费米子体系中的典型量子临界点的影响。重费米子体系中量子临界点

的核心理论框架在 1977 年由 Doniach 提出^{[[13]},即在重费米子体系中存在两种基本能量尺度,近藤温度 *T*_K和 RKKY(Ruderman-Kittel-Kasuya-Yosida)相互作用的能量尺度 *T*_{RKKY}。近藤效应屏蔽局域磁矩,RKKY 相互作用导致磁有序(多数情况是反铁磁)的发生。当两者能量尺度相近的时候,反铁磁有序温度被压制到零温,反铁磁有序和费米液体之间出现量子临界点^[13]。当几何阻挫引起的自旋涨落的能量尺度足够大时,将会参与到两者的竞争之中,因而简单的 Doniach 相图不再适用,引发出新的量子临界问题。另一类问题是重费米子体系中由几何阻挫诱导的奇异量子态。绝缘体中的自旋阻挫会导致自旋液体之类的奇异量子态,而在重费米子体系中,不仅仅存在局域磁矩之间的阻挫状态,同时还存在局域磁矩和周围传导电子之间的耦合作用,因而在重费米子体系中是否存在金属自旋液体态以及和绝缘体中的自旋液体之间又有什么不同,是一类非常值得研究的问题。

在重费米子体系中引入自旋阻挫,一定程度上将完全独立的两大研究领域, 重费米子体系和几何阻挫体系,联系了起来。在本章中我们将首先对涉及到的这 两个研究领域的背景知识进行回顾,然后再对几何阻挫重费米子体系的前期相关 研究进行介绍。

1.2 重费米子体系的研究背景

重费米子体系,有时也被称为重电子体系,是一类在晶格上存在周期性排列 的局域磁矩的金属,这些局域磁矩来自稀土或者锕系元素中未满壳层的 *f* 电子 ^[1,3,14]。CeAl₃被认为是实验上发现的第一个重费米子金属,Andres 等人^[15]在研究 金属间化合物 CeAl₃在低温下的电子性质时,在 150 mK 以下的温度区域内,比 热随温度线性变化,拟合得到异常巨大的电子比热系数 *y* = 1620 mJ/mol K²,当 时 Andres 等人将这一现象归结为 4*f* 电子形成的虚拟束缚态。紧接着 Steglich 等 人^[16]在研究 CeCu₂Si₂ 的低温性质时,在低于 *T** = 10 K 以下,比热上也观察到了 巨大的电子比热系数 *y*,他们提出这种比热上的异常是由于 4*f* 电子和传导电子形 成的"重费米子"准粒子引起的。对于普通金属铜、铝来说,其低温下电子比热系 数 *y* 在 1 mJ/mol K² 的量级,而在 CeCu₂Si₂ 中电子比热系数 *y* 值可达 1 J/mol K², 电子的有效质量是和电子比热系数成正比的,因而 CeCu₂Si₂ 中电子的有效质量 是自由电子的 1000 倍,因此这类材料也被称为重费米子材料。

1.2.1 非常规超导:以CeCu₂Si₂和UBe₁₃为例

重费米子体系之所以被大家广泛关注,是因为在 1979 年 Steglich 等人在这 类体系里面发现了第一个非常规超导体: CeCu₂Si₂^[16]。他们发现 CeCu₂Si₂在超导 之上的低温区间内的性质和 CeAl₃非常类似,同样表现出明显的比热异常,对比 LaCu₂Si₂ 的比热表明,CeCu₂Si₂ 出现的比热异常跟晶格和 5*d* 电子没有关系,而 是由不稳定的 4*f* 壳层与传导电子的相互作用引起的。CeCu₂Si₂ 显示出几个异常: 低于 1 K,交流磁化率与温度几乎没有依赖关系;低于 1.5 K,电阻率随温度线性 增加;比热在 3.5 K 有一个宽峰,其低温部分主要由 γ*T* 项组成,其巨大的 γ 值达 到 1 J/mol K² 左右。在 0.5 K 附近,一组异常出现在电阻、磁化率和比热上:电 阻在 0.6 K 以下消失;低场交流磁化率显示在 0.54 K 处由几乎与温度无关的顺磁 性变成巨大的抗磁性;比热在 0.51 K 处的跳变,表明在此处 CeCu₂Si₂ 中发生了 一个二级相变。很显然,电阻值变为零和交流磁化率的抗磁信号表明了超导态的 出现。

这一发现在当时引起了非常大的质疑,早在 1975 年,Bucher 等人在多晶化 合物 UBe₁₃ 中就已经观察到了超导现象^[17]。但当时他们认为 UBe₁₃ 中的超导可能 是多晶中析出的 U 的纤维状杂质导致的,并非本征超导。直到 1983 年 Ott 等人 ^[18]才在单晶 UBe₁₃ 中证实了存在本征的体超导。在 CeCu₂Si₂ 中,在高温区域三 价 Ce 原子中的 4f 电子是局域的,随着温度的降低,三价 Ce 原子中的 4f 电子与 周围的传到电子发生相互作用,在费米能级处形成的准粒子有着巨大的电子有效 质量,随之相变到有相当大临界磁场的超导相^[16]。UBe₁₃ 中有着和 CeCu₂Si₂类似 又更加奇异的性质,由于这种化合物中最近邻 U-U 的间距非常大,因此可以假 设其中的 U 原子是四价的构型,有两个相对比较局域的 5f 电子,100 K 以上磁 化率满足居里-外斯定律验证了以上的假设。在 UBe₁₃ 中低频交流磁化率中出现 的强烈的抗磁信号不能单独给出体超导的明确证据,但是,另外观察到的比热的 异常进一步验证了体超导的存在。单晶 UBe₁₃ 中的本征体超导,对于 Steglich 等 人在 CeCu₂Si₂ 中发现的超导的真实性,提供了重要的其他独立实验上的支持,再 一次清晰的表明 f 电子的存在对于超导的出现是必要的。

1.2.2 量子临界点

1990 年代中期在重费米子材料中发现的量子临界点再一次让重费米子研究 得到广泛的关注^[19-21]。重费米子材料中的量子临界点的研究主要包括两大部分: 一部分是关于量子临界点附近的非费米液体行为,一种不能用准粒子重整化来描 述的奇异金属态^[22];另一部分是关于量子临界点附近出现的非常规超导,0K处 的量子相变和量子相变点可能深刻地改变了有限温度处的金属性质。在重费米子 材料中可以通过化学掺杂、磁场和压力等非热力学量的调控达到量子临界点,下 面我们通过三个典型的材料对重费米子中的量子临界点进行介绍:第一个是化学 掺杂调控的典型材料 CeCu_{6-x}Au_x^[19,20,23,24];第二个是磁场调控的典型材料 YbRh₂Si₂^[25-27];第三个是压力调控的典型材料 CePd₂Si₂^[28]。



图 1.1 CeCu_{6-x}Au_x 中 Au 的掺杂量 x 和温度 T 的相图^[4]

Figure1.1 Phase diagram of CeCu_{6-x}Au_x with doping concentration of Au as x-axis, temperature as y axis^[4]

CeCu₆ 是一个典型的非磁性重费米子金属体系。在 CeCu_{6-x}Au_x 中通过改变 Au 的掺杂比例,可以将顺磁态的 CeCu₆ 调控到反铁磁量子临界点^[19,20,23,24]。当 x >0.1 时,体系处于反铁磁有序态,当x < 0.1时,体系进入费米液体态,而当x =0.1 时,体系恰好处于反铁磁的量子临界点位置,如图 1.1 所示。在朗道费米液 体理论框架中^[29],费米液体行为包含以下特征:比热上电子比热系数 y 在低温区 域不随温度发生变化;磁化率 χ 呈现泡利顺磁且与温度没有依赖关系;电阻率 ρ 与温度呈现平方的依赖关系。在反铁磁的量子临界点处,CeCu_{5.9}Au_{0.1}表现出了

明显的非费米液体行为,比热 C/T 在一个数量级的温度区间内呈现出-lnT 的温度依赖关系,磁化率随着温度降低而增加,电阻率在 20 mK 到 500 mK 的温度区间内满足线性的温度依赖关系。



图 1.2 YbRh₂Si₂在磁场中的相图^[26] Figure 1.2 The phase diagram of YbRh₂Si₂ in magnetic field^[26]

重费米子金属 YbRh₂Si₂在 70 mK 附近存在一个微弱的反铁磁相变。通过磁场的调控,反铁磁有序可以被连续的抑制到 0 K,出现一个磁场诱导的量子临界点^[25-27],如图 1.2 所示。类似于 CeCu_{6-x}Au_x体系,在磁场诱导的量子临界点附近,出现与温度成线性关系的电阻率,表现出明显的非费米液体行为,而在反铁磁有序区域和费米液体区域,电阻率都表现出 Δρ~T²的费米液体行为。不同于 CeCu_{6-x}Au_x体系中在量子临界点处比热 C/T 在一个数量级的温度区间内呈现出-lnT 的温度依赖关系,在 YbRh₂Si₂中比热 C/T 在 10 K 到 0.3 K 温度区间内呈现-lnT 的温度依赖关系,而在 0.3 K 以下出现了偏离-lnT 的上翘行为,比热 C/T 的上翘部分不在巡游的自旋涨落理论所预期的范围内,这很可能跟量子临界点处的近藤破坏有关^[27]。霍尔系数在磁场诱导的量子临界点左右两侧有明显的跳变,这表明在量子临界点处费米面上发生明显的大小变化,进一步证明了在量子临界点处发生了近藤破坏^[30]:即在量子临界点处不仅仅具有序参量的量子涨落,还发生了重费米子准粒子的近藤破坏。

在 CePd₂Si₂中,当达到临界压力时,磁有序消失的同时会出现一个新的超导态,如图 1.3 所示。超导态之上,电阻在两个数量级的温度区间内以*T*^{1.2±0.1}的形式随温度变化,表现出明显的非费米液体行为^[31,32]。接下来的研究发现在一类重

费米子材料中都存在类似的现象,即通过压力调控反铁磁相变,在量子临界点附 近会出现重费米子超导态,例如 CeIn3^[28]和 CeCu2Ge2^[33]。在重费米子超导体 CePd2Si2中,载流子配对的方式并不是像常规超导体中由声子主导的,而是由磁 性的相互作用引起的。当处于临界点附近时,磁性的相互作用变成长程的,有利 于载流子束缚成对。通过压力的方式调控载流子密度n,在临界载流子密度nc附 近,重费米子超导出现。超导出现在临界密度nc附近很窄的区域,意味着在这一 区域附近,磁性相互作用超越其他效应而起到了主导作用,这会使得低温下的金 属性质超出普通金属态的费米液体框架,电阻上表现为非费米液体行为。同时对 于两个准粒子磁矩的相对方向,在一定的时间和空间范围内相互作用是有吸引力 的,因此在低温下可能出现束缚态,从而产生超导电性。





Figure 1.3 The phase diagram of CePd₂Si₂ under pressure^[4]

1.3 自旋阻挫体系的研究背景

1.3.1 自旋阻挫的概念

物理中的阻挫,意味着相互竞争的作用力不能同时满足能量最小化的现象^[5]。 阻挫的概念被应用于广泛的领域之中,从磁性材料到负膨胀固体材料以及软物质 材料^[34]。材料中的局域磁矩(或者说自旋)之间由于竞争的交换相互作用不能同 时被满足,因而在系统的基态上出现大量的简并态,这样的材料被称为阻挫磁体 ^[7]。在特定条件下,阻挫磁体中的局域磁矩形成类似于液体的状态,也就是通常 所说的自旋液体态。在自旋液体中的自旋是高度关联的,但是即使到了绝对零度

依然存在很强的涨落。自旋液体中的自旋涨落可以是经典的也可以是量子的,表现出明显的集体行为,例如分数化的粒子激发。自旋阻挫的研究开始于反铁磁材料,在反铁磁材料中简单的几何结构会引起阻挫。这种几何阻挫是由于系统中的自旋呈正三角形排布,而自旋间的最近邻的相互作用倾向于反平行排列导致的。图 1.4 展示了一些常见的几何阻挫的晶格:二维的三角晶格和 Kagomé 晶格,三维的烧绿石晶格^[5,7]。



图 1.4 一些常见的几何阻挫结构^[5]

有伊辛(Ising)自旋的二维(2D)晶格反铁磁体是自旋阻挫的典型体系之一^[35]。伊辛自旋是指自旋的取向只能沿着单一轴向向上或者向下。Wannier 在 1950 年研究中发现这种体系的基态上存在大量的简并态^[36],例如,在图 1.5 中的三角 晶格上存在最近邻相互作用为反铁磁相互作用的伊辛自旋,这种情况下三个自旋 不能同时反平行排列,因而基态是六重简并的。这种基态上的简并度被认为是关 键性的甚至是决定性的阻挫特征。在三角伊辛自旋反铁磁体中,基态的熵是巨大 的,熵值达到 0.323*k*_B*N*,其中 *k*_B 是玻尔兹曼常数,*N* 代表自旋的数量。在低温 下,自旋被限制在伊辛自旋反铁磁体的基态上,虽然自旋是关联的,但是存在连

Figure 1.4 Some common frustrated lattices^[5]

续的热力学涨落。类比于分子凝聚成的普通的液体状态,这种自旋的高度关联态 并不是静态的有序。三角格子伊辛自旋反铁磁体中的自旋会形成"自旋液体",或 者说存在自旋关联的量子顺磁体。



图 1.5 三角格子中自旋处于阻挫状态的六种简并态^[5]

Figure 1.5 Six degenerate ground states with spin frustration in a triangular lattice^[5]

1.3.2 实验上的判据

如何从实验上来判断具体材料中的阻挫强度, Ramirez 给出了一种非常简单的判断方法,并得到了广泛应用^[8]。在高温区域,局域磁矩的自旋磁化率一般满足居里-外斯定律:

$$\chi \approx \frac{C}{T - \theta_{CW}} \tag{1.1}$$

其中 C 是居里常数, T 是温度, θ_{CW} 是居里-外斯温度。平均场理论中居里-外斯温度 θ_{CW} 满足以下关系:

$$\theta_{CW} = \frac{2S(S+1)}{3k_{R}} \sum z_{n} J_{n} \quad \quad (1.2)$$

其中 k_B是玻尔兹曼常数, z 是自旋最近邻的数目, n 是指第 n 个近邻, J_n是交换 相互作用常数。居里-外斯温度 θ_{cw} 是磁性系统中所有交换相互作用的代数和, 因此居里-外斯温度θ_{cw}可以估算出磁性相互作用的能量尺度。居里-外斯温度θ_{cw} 可以从 1/χ 随温度 T 变化的线性拟合中得到。图 1.6 给出了没有阻挫和存在阻挫 情况下居里-外斯温度与磁有序温度的比较。没有阻挫的情况下, 一般在磁化率 上磁有序的温度与居里-外斯温度 θ_{cw} 大致相当。对于铁磁的相变温度 T_c来说, $\theta_{CW}/T_c \sim 1$,对于反铁磁的奈尔温度 T_N 来说,由于反铁磁序存在不同的构型,因而不同的反铁磁构型会有不同的 $|\theta_{CW}|/T_N$ 的比值, $|\theta_{CW}|/T_N$ 的典型比值一般在 2~5 之间。 例如钙钛矿结构的反铁磁 LnCrO₃, $|\theta_{CW}|/T_N$ 的比值在 2~3 之间^[7]。当有阻挫存在的时候,局域磁矩的涨落增强,使得有序相变发生的温度大大降低,反铁磁相变的奈尔温度 T_N 远远小于居里-外斯温度 θ_{CW} 。因而对比居里-外斯温度 θ_{CW} 和有序的相变温度 T_C 的大小可以定量的表示磁性体系中阻挫的强度,引入参数 f 定量的描述自旋阻挫的强度:

其中 *T*_c代表任何集体有序转变温度。通常,*f* > 10被认为材料中存在很强的阻挫, 有序被强烈抑制,温度区间 *T*_c < *T* < |θ_{cw}|定义为自旋液体区域。当自旋一直到绝 对零度还处于自旋液体状态时,*f*趋于无穷大。



图 1.6 没有阻挫和存在阻挫情况下居里-外斯温度与磁有序温度的比较^[8] Figure 1.6 The comparison of Curie Weiss temperature with magnetic ordering temperature in the absence and presence of frustration^[8]

1.3.3 阻挫磁体的基态

1.3.3.1 非共线长程有序态

没有阻挫的情况下磁性系统中可能出现的长程序,会因为阻挫的存在而被抑制,因而晶格内的阻挫对于磁性系统的基态的影响,与晶格维度和自旋维度是同

等重要的。大部分存在长程有序态相变的阻挫系统中的自旋会形成一种非共线的结构。这种非共线结构最为典型的就是在二维的三角晶格中三个自旋呈 120°排列,如图 1.7 (a)所示。而在四面体和烧绿石晶格中两两自旋呈 109°排列,如图 1.7 (b) 所示。以上两种非共线的自旋结构都不止一种方式可以实现,因而其基态是简并的。 需要强调的是非共线的自旋结构不适用于三角晶格中的伊辛自旋,由于自旋取向仅 仅在单一轴向上,不能形成以上的折衷的自旋结构。



图 1.7 折衷的非共线结构^[7]

(a) 三角晶格上的自旋成 120°排列,(b) 四面体晶格上的自旋成 109°排列。

Figure 1.7 Compromise non-collinear magnetic structures^[7]

(a) the 120° structure on a triangular lattice, (b) the 109° structure on a tetrahedral lattice.

1.3.3.2 自旋玻璃态

从微观上来说,自旋玻璃态是自旋以或多或少的随机方式冻结成的一种结构^[37-39]。自旋玻璃态存在不同的冻结温度 *T*_f,在该温度以下,冻结态由随机的涨落状态生成。冻结温度 *T*_f以下的冻结态在数量是非常大的,不同的冻结态之间仅仅存在微小的能量差别,因而在基态上形成的随机冻结态是由实验条件决定的,在实验上可以观察到回滞的存在^[7]。

自旋玻璃态在实验上有着很多特征,最为常见的是以下五个特征^[40,41]:(1)在直 流磁化率上,场冷(FC)和零场冷(ZFC)在冻结温度 *T*_f以下是分离的;(2)冻结 温度 *T*_f以下,交流磁化率的实部 χ'和虚部 χ"随温度变化出现的峰存在很强的频率依 赖关系;(3)冻结温度 *T*_f以下,比热上电子贡献的部分随温度的变化是线性依赖关 系;(4)非弹性的中子衍射测量得到的自旋涨落或者自旋弛豫时间在冻结温度 *T*_f以 下会有显着下降;(5)中子衍射实验上观察不到布拉格峰,表明没有长程有序态的存在。

1.3.3.3 自旋液体态

自旋液体态中自旋的涨落可以是经典的热力学涨落,也可以是量子涨落。当 量子涨落足够强的时候,基态上就会出现量子自旋液体态,在这种态里面的自旋 同时有很多不同的取向。对于量子自旋液体态的研究集中在被称为莫特绝缘体的 固体材料中,莫特绝缘体中的电子被局域在孤立的原子或者分子中,同时保持了 自旋上的自由度。

自旋冰中自旋的涨落是经典的热力学涨落主导的,因而是一种经典意义上的 自旋液体^[42]。自旋冰的研究是由 Harris 等人在 1997 年最先开始的^[43]。以 Dy₂Ti₂O₇ 为例^[44-46],仅仅稀土元素的离子是有磁性的,这些磁性离子形成了烧绿石晶格(许 多四面体项角相连形成的格子)。这些 f 电子的自旋是经典的,表现为自旋取向 沿着 <111〉单一轴向的伊辛双重态。自旋之间的相互作用都是长程的,最近邻自 旋之间的有效的相互作用 J_{eff}是铁磁性的^[47-49],这些铁磁性的相互作用由于不同 自旋的伊辛轴向而产生阻挫效应。因而单一四面体最低能量的占据态是高度简并 的,共有六种自旋结构,每种自旋结构都是两个自旋取向沿着四面体中心向外, 另外两个自旋取向沿着四面体的中心向内。当 k_BT << J_{eff}时,系统将会在上述六 种不同自旋结构中发生涨落,因而系统的状态数将是指数量级的。虽然自旋在这 种状态下整体上显示顺磁性,但是由于自旋冰结构中的两个自旋一定会与另外两 个自旋取向相反,因而自旋之间有着很强的关联性,这种关联的顺磁态属于经典 自旋液体。由于自旋冰中存在长程的自旋关联,因而在本质上与普通顺磁态是有 区别的^[50]。

Anderson 在 1973 年首次提出量子自旋液体最初的模型—绝缘的共振价键态 ^[51]。价键是形成非磁性态的一种天然的结构基础,由于自旋间的反铁磁相互作用, 一对自旋形成自旋为 0 的单态。由于两个自旋已经最大化的纠缠在一起,两个自 旋形成的价键是高度量子化的。如果系统中的自旋全部形成价键,那么系统的基 态就是自旋为 0 的非磁性态^[52]。形成上述基态的一种方式就是将所有的自旋划 分成特殊的价键,这些自旋组成的价键是静态和局域的,被称之为固体价键态^[53-56]。固体价键态并不是真正的量子自旋液体态,是因为它通常会存在晶体的对称

性破缺,同时又缺少长程的自旋纠缠。为了实现真正的量子自旋液体态,自旋形成的价键之间必须存在强烈的量子涨落,量子涨落会使得自旋形成的价键不再以一定规律排列,而是不规则的分布在整个基态中,此时的基态更像是价键液体态而不是固体态,被称为共振价健态^[51]。一般来说,不同的量子自旋液体态有着不同的价键组合,有些量子自旋液体态中价键的自旋并不需要是最近邻的,相隔很远的两个自旋之间也可以产生价键,这样的两个自旋纠缠成的单态,只需要很小的能量就可以被破坏成单独的自旋。因而相比于仅仅存在短程价键的量子自旋液体会有更小的能量激发^[57]。

1.4 几何阻挫重费米子体系的研究背景

传统上自旋阻挫的研究领域主要集中于莫特绝缘体体系中,在过去的几十年 里,大量的理论和实验来研究阻挫绝缘体中的奇异量子物态,比如量子自旋液体 态^[5,6,58,59]。相对而言,金属中的自旋阻挫很少引起大家的关注,这是因为金属中 存在自旋阻挫似乎是难以理解的:在绝缘体系统中,自旋阻挫的产生主要通过局 域磁矩之间最近邻的直接相互作用,而在金属体系中,自旋相互作用将远远超出 海森堡的最近邻模型的描述,自旋之间的相互作用很难被限制在最近邻,而大多 都是长程的间接相互作用,这种相互作用的长程性很大程度上将削弱晶格结构引 起的几何阻挫效应,使得基态上的简并度大大降低^[60]。

但是近年来越来越多的理论和实验表明,阻挫在一类特殊的金属体系中也起 着非常重要的作用^[12,61,62]。这类金属中含有类似晶格的周期性排列的局域磁矩, 每个格点上的局域磁矩同时存在近藤效应,又被称为近藤晶格体系。当晶格中的 局域磁矩形成几何阻挫结构的时候,阻挫将会对近藤晶格体系产生很大的影响。 在金属体系中研究阻挫磁性,相比于绝缘体体系的优势在于阻挫磁性在金属中的 能量尺度远小于在绝缘体中的能量尺度,因而金属中的阻挫更易于进行量子调控, 来实现磁性和阻挫的相互竞争。在绝缘体中,电子是完全局域的,而在金属中, 电子表现出局域和巡游的双重特性,因而金属中的阻挫相比于绝缘体中的阻挫有 着很大不同。

1.4.1 近藤体系中几何阻挫的特点

近藤体系中局域磁矩的相互作用是通过传导电子完成的,属于间接的相互作

用,同时具有长程性,并非像绝缘体中局域磁矩之间的相互作用限制在最近邻(少部分情况会考虑次近邻),因而相比于绝缘体,近藤体系中存在更长程的自旋与 自旋之间的相互作用,也正是因为这个原因,几何阻挫在近藤体系中更难存在, 只考虑最近邻相互作用的情况下,几何阻挫很强,而当相互作用变为长程性时, 几何阻挫将会被大大削弱。因而在近藤体系中,磁性只能被几何阻挫部分的抑制。 另一方面,在近藤体系中,除了几何阻挫以外,还存在由不同相互作用的竞争导 致的阻挫,因而在没有几何阻挫晶格的体系中也可能存在磁性阻挫。

在绝缘体体系中,每个原子位置上的局域磁矩大小时固定的,能改变的只有 局域磁矩的方向,而在近藤体系中,局域磁矩的大小和方向都可以改变,因而在 近藤体系中,通过改变子晶格上的局域磁矩大小来消除阻挫,这将会导致磁结构 以混合相的形式存在,即在完全等价的晶格格点中只有一部分表现出局域磁矩, 另一部分表现出非磁性,整体呈现出部分磁有序的状态。这种磁有序和无序共存 的情况最早在 DyMn₂ 中的 Laves 相中发现^[63,64],考虑一个孤立的三角格子,每 个格点上的自旋只能沿着单一轴向向上或者向下,两两发生反铁磁关联,在绝缘 体体系中,这种情况将不能形成一个稳定的磁结构,基态一定是非简并的,而在 DvMn2中,三角格子中的两个格点上存在反铁磁关联的局域磁矩,而在第三个格 点上局域磁矩消失。在其他的含有阻挫晶格的体系中也发现了相同的情况,比如 三角格子的 UNi₄B^[65], 以及 Kagomé 晶格的 CePdAl^[66-68]。在这两个体系中, f 电 子磁矩的不稳定性很大可能来由近藤效应和局域磁矩之间的相互作用的竞争导 致的。同样的情况还存在于 CeSb 中,随着温度的降低, CeSb 会出现几个连续的 磁性相变,其磁性结构中包含磁性和非磁性的晶格平面[69,70]。在以上的这些体系 当中, 混合的磁结构对于外界的参数都非常敏感, 很容易被压力或者磁场诱导出 来或者破坏。

除了局域磁矩之间相互作用的竞争,金属体系中还存在局域磁矩和巡游电子 之间的耦合作用。因而当磁性被完全抑制的时候,能够产生更加丰富的奇异量子 态,比如金属性的螺旋磁性(metallic spiral order)^[71]、金属性的自旋液体(metallic spin liquid)^[72]和非常规超导(unconventional superconductor)^[73],对于以上奇异 量子态的研究将会是非常有趣也非常具有挑战性的探索工作。

1.4.2 几个典型的阻挫近藤体系

金属中的阻挫存在于很多近藤体系中,在这些体系中主要以几何阻挫的形式存在,典型的材料包括烧绿石结构的 Pr₂Ir₂O₇^[72,74]、Kagomé 格子的 CePdAl 和 YbAgGe^[66,75-77]、Shastry-Suttherland 格子的 Yb₂Pt₂Pb^[78-80]。另外在没有几何阻挫 晶格存在的情况下,也可能存在由不同相互作用导致的磁性阻挫,比如典型的材料 YbRh₂(Si_{0.95}Ge_{0.05})^{2^[81]。下面我们将来介绍阻挫金属体系中的相关研究进展。}



图 1.8 YbAgGe 的结构图^[75]



YbAgGe 是六方 ZrNiAl 结构的重费米子化合物^[82-84],如图 1.8 所示,Yb 原 子在 ab 面内形成了带有畸变的 kagomé 格子,Yb 原子在面内间距远远小于面间 间距,因而属于准二维几何阻挫结构。YbAgGe 作为带有几何阻挫结构的重费米 子金属,其居里-外斯温度 $\theta_{ab} = -15$ K,第一个磁性相变出现在 $T_{M} = 0.8$ K 附近 ^[76],阻挫强度 $f = |\theta_{ab}| / T_{M} \approx 19$,表明该材料中有很强的阻挫存在。

Bud'ko 等人最早发现了 YbAgGe 中磁场诱导的非费米液体区域^[85],磁场平行于 a 轴和 c 轴的电阻率分别在 5 T 到 9 T 之间和 8 T 到 12 T 之间出现非费米液体行为^[86]。图 1.9 给出了磁场平行于 a 轴的相图,在磁有序之后的很大磁场区域内电阻率上表现出非费米液体行为。值得注意的是,在图 1.9 中电阻率出现非费米液体行为的磁场区域内,比热上并没有出现非费米液体行为^[87]。在 5 T 和 9 T 之间的磁场内,比热在 0.4 K 以下随着温度降低而缓慢减小,如图 1.10 所示。



图 1.9 YbAgGe 的温度-磁场相图 (H // a) [86]

Figure 1.9 The temperature-magnetic field phase diagram of YbAgGe(H // a)^[86]



图 1.10 YbAgGe 在低温下随温度变化的比热(H//ab)^[87] Figure 1.10 Low temperature part of the temperature-dependent heat

capacity of YbAgGe^[87]

YbRh₂(Si_{0.95}Ge_{0.05})₂ 在磁场的调控下,在有限的磁场区域内存在稳定的非费 米液体相,介于反铁磁有序和费米液体态之间^[81],如图 1.11 所示。理论上提出 这一非费米液体相跟 YbRh₂(Si_{0.95}Ge_{0.05})₂ 中的磁性阻挫有关。在重费米子金属 YbRh₂(Si_{0.95}Ge_{0.05})₂ 中虽然没有几何阻挫存在,但是实验上在 YbRh₂Si₂ 的量子临 界点处观察到了铁磁涨落,当掺杂 Ge 的时候,反铁磁有序被抑制,在磁场的调 控下,反铁磁涨落和铁磁涨落存在明显的竞争,因而有磁性阻挫的存在。



图 1.11 YbRh₂(Si_{0.95}Ge_{0.05})₂ 在磁场下的相图(*B*//c)^[81] Figure 1.11 Phase diagram of YbRh₂(Si_{0.95}Ge_{0.05})₂ for *B*//c^[81]

 $Pr_2Ir_2O_7$ 是烧绿石结构的金属氧化物,这种金属体系中含有局域磁矩^[88]。 Pr^{3+} 的磁矩在 $T^* = 20$ K 以下存在反铁磁相互作用,直流磁化率一直到 70 mK 也没有表现出进入长程磁有序的特征,仅仅在 $T_f = 120$ mK 处出现了部分冻结的状态,在 T^* 之下,近藤效应开始出现,随着温度的降低,局域磁矩被部分屏蔽,在 $\theta_w = 1.7$ K 之下,进入重整化的反铁磁关联区域^[72],如图 1.12 所示。因而在 $T_f < T < \theta_w$ 的温度区域内可能存在金属性的自旋液体态,实验上在这一温度区域内还观察到了自发的反常霍尔效应,这被认为是手征性的自旋液体态的特征^[89]。



图 1.12 Pr₂Ir₂O₇中随温度变化的直流磁化率(B=20 mT//[111])^[72]

Figure 1.12 DC susceptibility as a function of $\ln T$ for $\Pr_2 \Pr_2 O_7 (B = 20 \text{ mT}//[111])^{[72]}$

1.5 本论文中所用的主要理论

1.5.1 从单杂质的近藤效应到重费米子金属中的近藤格子

在含有磁性杂质的金属中,随温度变化的电阻率在低温区域会出现极小值。 日本物理学家 Jun Kondo 对这一现象背后的机理给出了理论上的解释,因而被称 为近藤效应^[90]。近藤效应描述了局域磁矩的自旋和传导电子的自旋之间发生的交 换相互作用,理论模型表述为:

其中 \vec{s} 为局域磁矩的自旋, $\vec{\sigma}(0)$ 为传导电子的自旋,J为局域磁矩和传导电子自旋之间的相互作用。该交换相互作用J为负时,局域磁矩的自旋和传导电子的自旋倾向于反平行排列。高温时自由的局域磁矩,随着温度的降低逐渐被周围传导电子的自旋屏蔽,最终在低温时形成一个没有自旋的散射中心。在近藤效应中,这一自旋屏蔽过程时连续的,在温度低于某一特征能量尺度时就开始发生自旋屏蔽,这一特征温度被称为近藤温度 $T_{\rm K}$ 。局域磁矩对传导电子的散射率 1/r满足以下关系,

$$\frac{1}{\tau} = [J\rho + 2(J\rho)^2 \ln \frac{D}{T}]^2 \dots (1.5)$$

其中的ρ为传导电子海中的电子态密度,D为电子能带宽度。随着温度降低,散射 率和电阻率最终开始升高,因而电阻率会在低温区域出现极小值。对散射率中的 对数项的深入理解需要用到重整化群的理念,在高能量尺度,金属中的局域磁矩 是渐近自由的,但是当低于近藤温度时,局域磁矩就会和周围的传导电子发生强 烈的相互作用,最终被屏蔽形成近藤单态。

类比于含有磁性杂质的金属中的近藤效应, Doniach 提出重费米子金属可以 用近藤格子模型来解释^[13],重费米子金属中周期性排列的局域磁矩形成类似晶格 的结构,每个格点上的局域磁矩都会存在类似于单杂质模型中的近藤效应,如图 1.13 所示。重费米子金属中核心的物理在于排列成晶格结构的局域磁矩和周围的 传导电子海之间的相互作用。局域磁矩系统倾向于在低温形成反铁磁有序,格点 上的局域磁矩会诱导传导电子海中的自旋密度产生 Friedel 振荡,这种传导电子



图 1.13 近藤效应和近藤晶格效应^[2]

(a)当一个局域磁矩浸入费米海中时,它的自旋与传导电子纠缠在一起,形成局域单态。(b)近藤格子效应在传导电子态密度上产生费米共振,最终形成重电子能带。

Figure 1.13 Kondo effect and Kondo lattice effect^[2]

(a) When a localized moment is immersed in the conduction sea, its spin entangles with the conduction electrons forming a local singlet. (b)Kondo lattice effect builds Fermi resonance on the conduction sea, and finally forms the heavy electron band.

海中自旋密度的 Friedel 振荡会使得局域磁矩之间产生间接的相互作用,被称为 RKKY 相互作用^[91-93],如图 1.14 所示。Donaich 提出在近藤格子模型中存在两个 能量尺度,单杂质近藤温度 *T*_K和 RKKY 相互作用的能量尺度 *T*_{RKKY},给出以下 公式:





图 1.14 两个局域磁矩之间的 RKKY 相互作用示意图^[2]

Figure 1.14 Schematic diagram of RKKY interaction between two local moments^[2]
如图 1.15 所示,当 *Jp* 很小的时候,*T*_{RKKY} 是最大的能量尺度,局域磁矩最 终形成反铁磁有序态。当 *Jp* 很大的时候,*T*_K 是最大的能量尺度,局域磁矩被近 藤屏蔽形成单态,最终形成费米液体态,此时准粒子的费米面体积将由传导电子 和*f* 电子加起来的数目所决定,即





Figure 1.15 Doniach phase diagram^[2]

1.5.2 近藤格子模型中的两类量子临界点

在朗道相变理论中,不同相之间是以对称性破缺为特征的序参量来划分的。 当发生二级相变时,临界涨落是以序参量在空间上的涨落为特征,关联长度ξ在 临界点处发散,这是对经典的热力学上的临界点的描述。对于量子临界点的标准 描述也沿着以上路径,临界的模式仍然是考虑序参量的涨落,唯一不同的是,在 量子临界点中,序参量的涨落不仅在空间中发生,还在虚拟时间上发生^[94,95]。关 联时间τ₀和关联长度ξ一起定义了一个新的动态指数z,三者满足以下关系:

$$\tau_0 \propto \xi^z \tag{1.8}$$

对于巡游反铁磁的量子临界点来说,动态指数 z = 2。这种巡游反铁磁中的序参

19

量的量子涨落又被称为自旋密度波类型的量子临界点[94,96-98]。

但是在一些特殊的重费米子材料中,比如YbRh₂Si₂在磁场下的量子临界点, 不符合自旋密度波形式的量子临界点所给出的标度率^[27]。这些实验使得人们意识 到对于量子临界点的标准描述中只考虑序参量的量子涨落是不充分的,相反的,



图 1.16 两类量子临界点的示意图[4]

(a)为自旋密度波类型的量子临界点示意图,(b)为近藤破坏类型的量子临界点示意
 图。*T*₀为近藤屏蔽的初始温度,*T*_N表示反铁磁相变温度,*T*_{FL}为费米液体出现的温度,*E*_{loc}
 是与f电子退局域化有关的能量尺度,QCP表示量子临界点。

Figure 1.16 Schematic phase diagrams showing two types of QCP^[4]

(a) QCP of spin-density-wave type, (b) QCP of Kondo breakdown type. T_0 represents the initial temperature of Kondo screening. T_N represents the Neel temperature and T_{FL} the onset of the low-temperature FL regime, E_{loc}^* marks an energy scale related to delocalization of f electron, QCP means quantum critical point.

内禀的量子效应会起到很重要的作用^[24,99-101]。在这些特殊的材料中,量子临界还 存在另外的临界模式,即在0K时发生反铁磁相变的同时还存在局域近藤单态的 破坏,这种类型的量子临界点被称为近藤破坏类型的量子临界点[102-105]。近藤效 应在临界处被破坏,是因为局域磁矩不仅和传导电子发生耦合,还和其他的局域 磁矩的量子涨落发生耦合。近藤效应的临界破坏表明磁性相变伴随着电子态的局 域和巡游的转变。近藤屏蔽的动态过程在两类量子临界点中是不同的,如图 1.16 所示。在足够高的温度时,近藤格子更像是独立的局域磁矩的集合,跟传导电子 的耦合很弱。在温度 T_0 时,初始的向近藤屏蔽的转变开始发生。而在足够低的 温度时,近藤屏蔽过程是否能够完成取决于局域磁矩中 RKKY 相互作用和近藤 效应的竞争。与能量尺度 Eia。有关的线将两个不同的区域分割开来,标志着从小 费米面区域到大费米面区域的转变。在 Elac线的右侧区域,局域磁矩被近藤屏蔽 形成单态,参与到费米面的形成之中。而在 *E*_a线的左侧区域,即使到 0 K 处局 域磁矩也没有被近藤效应完全屏蔽,此时的局域磁矩没有参与费米面的形成,最 终将在反铁磁相变 TN之下形成反铁磁有序。Eios线在零温处将发生真正的 f 电子 局域到退局域的相变,而在有限温度则变成一个转变过程。当 Eigg给好落在反 铁磁相变边界时,此时的量子临界涨落不仅仅包含序参量的涨落,还包括近藤效 应变,而在有限温度则变成一个转变过程。当 E^{*}_{loc}线恰好落在反铁磁应的破坏, 因而此处的量子临界点为近藤破坏类型的量子临界点。当 E^{*}_{in}线落在反铁磁有序 区域内时,在 E:__线零温处将会发生局域反铁磁向巡游反铁磁的转变,因而之后 巡游反铁磁的量子临界点处的量子涨落仅仅包含序参量的量子涨落,被称为自旋 密度波类型的量子临界点。当然还可能存在第三种情况,即 E^{*}@线落在费米液体 区域内,此时反铁磁区域与费米液体区域发生分离,将会在零温处出现有限区域 的既非磁有序也不是近藤屏蔽的费米液体的奇异态。

1.5.3 重费米子体系中的几何阻挫

以量子临界点连接反铁磁有序态和费米液体态的 Doniach 相图给出了重费 米子体系最基本的理论模型,在 Doniach 相图中 RKKY 相互作用和近藤效应相 互竞争,诱导了基态上的反铁磁有序和费米液体态。而在一些实验上观察到反铁 磁区域和费米液体区域发生分离的现象,使得大家开始关注在近藤格子体系中除 了 RKKY 相互作用和近藤效应以外,阻挫效应也起着非常重要的作用。理论上

21

对此最简单也是最为有效的方法是在阻挫近藤格子体系中的相图上引入阻挫强 度轴,来研究阻挫和近藤屏蔽之间的竞争^[11,61,81,106,107]。



图 1.17 在近藤格子模型中考虑阻挫存在情况下的示意相图^[12]

Figure 1.17 schematic phase diagram of Kondo lattice model considering the existence of frustration^[12]

理论上的"*Q-K*"相图中两个轴向分别描述近藤屏蔽的集体效应(K)和阻挫 诱导的量子零点运动(*Q*),如图 1.17 所示。这一理论模型中首先考虑在重费米 子体系中完全移除传导电子,仅仅考虑由局域磁矩组成的的磁性晶格,每个格点 上的局域磁矩彼此之间存在短程的反铁磁关联,然后再考虑调控传导电子和磁性 晶格之间的耦合效应 *K*^[12]。这一理论模型中的关键元素,即形成晶格结构的局域 磁矩是磁性阻挫的。阻挫在重费米子体系中以多种形式存在,它可以直接以几何 阻挫的形式出现,像 Pr₂Ir₂O₇中的烧绿石结构^[72]以及 Yb₂Pt₂Pb 中的 Shastry-Sutherland 格子^[79,80]。阻挫还可以通过不同相互作用之间的竞争来实现^[108]。

首先来分析图 1.17 中的 *x* 轴,即近藤屏蔽的集体效应。不考虑阻挫的情况 下,Doniach 认为从磁有序态到重费米子液体态的相变发生在近藤效应的能量尺 度和 RKKY 相互作用相当的时候,即 *K*_c=*T*_K/J^H~1。因而可以用 *K*=*T*_K/J^H作为相 关参数描述 Doniach 相图模型。图 1.17 中的 *y* 轴与阻挫有关,当不考虑局域磁矩 与传导电子的耦合的情况下,在某个临界值 *Q*_c之上磁有序消失,出现自旋液体 或者价键固体态。当同时考虑近藤屏蔽的集体效应和阻挫时,反铁磁有序态出现 在 *K* 和 *Q* 都很小的时候,它的边界将连接 *K*_c 和 *Q*_c。在反铁磁有序之外的顺磁态 内,当近藤屏蔽的集体效应 *K* 很小而阻挫 *Q* 很大时,此时费米面中只包含传导 电子部分,被称为小费米面区域,这一区域可能存在没有对称性破缺发生的自旋 液体态,但是相对于自旋液体态而言,实际上更多的阻挫体系在这一区域形成的 是有晶格对称性破缺的固体价键态。而当近藤屏蔽的集体效应 K 很大而阻挫 Q 很小时,此时局域磁矩被完全屏蔽,费米面是由传导电子和 f 电子一起组成的, 被称为大费米面区域,这一区域形成重费米液体态。在反铁磁有序之外的顺磁态 内的小费米面到大费米面的转变不是连续发生的,因而在大费米面区域和小费米 面区域连接的边界处存在量子相变,对应于 f 电子的局域到巡游的相变。

1.6 本论文拟解决的科学问题

目前为止,对于重费米子金属体系中的几何阻挫效应研究还非常少见。一般 而言,在金属体系中几何阻挫效应很难存在,这是因为在绝缘体体系中,局域磁 矩之间的相互作用一般限制在最近邻,几何阻挫效应很强,而对于金属体系来说, 局域磁矩之间的相互作用是长程的,超出了几何结构的限制,此时几何阻挫效应 被大大削弱了。

在一类特殊的重费米子金属中,当局域磁矩形成的晶格带有几何阻挫结构, 形成几何阻挫重费米子金属。CePdAl 就是其中的典型材料,Ce原子在其 ab 平 面上形成了畸变的 Kagomé 格子,同时局域磁矩之间存在反铁磁关联,因而 CePdAl 满足了几何阻挫效应存在的条件。但是,CePdAl 仍然形成了长程磁有序 相。这是因为其基态形成了磁有序和无序的混合相,即 2/3 的 Ce原子存在局域 磁矩并形成反铁磁有序,1/3 的 Ce原子上的局域磁矩被近藤效应所屏蔽,这种稳 定的磁结构完全消除了基态上可能出现的其他简并态。

本论文研究几何阻挫重费米子金属 CePdAl 中几何阻挫效应对量子临界物性的影响。理论上认为通过增加几何阻挫强度,可以将磁有序态调控到被称为自旋液体的量子顺磁态内。我们希望通过磁场和压力这些非热力学量的调控,将 CePdAl 的基态从稳定的部分反铁磁有序调控到几何阻挫效应起关键作用的量子临界区域。CePdAl 的量子临界物性是否符合 Doniach 相图的描述,阻挫是否会导致金属自旋液体态的产生等是我们期待解决的问题。

另外,对于重费米子体系中的量子临界点,一直存在着很大争论,即除了序 参量涨落之外,是否存在费米面大小的突变。在之前大部分的实验中,磁有序和 无序的边界与大小费米面的边界是重合在一起的,因而很难给出实验验证。由于

23

阻挫导致的量子涨落的影响,我们期待在该材料中磁性量子临界点和费米面重构 的量子临界点分离,提供独立研究两类量子临界点的环境。

第2章 CePdAl的研究背景以及基本物性

近年来,金属中的几何阻挫的研究引起了理论和实验上的极大兴趣,因而越来越多的带有几何阻挫结构的重费米子材料引起大家的广泛关注,典型的材料比如烧绿石结构的 Pr₂Ir₂O₇^[72,74],Kagomé 结构的 CePdAl、CeRhSn、CeIrSn 以及YbAgGe^[75-77,109-112],Shastry-Sutherland 结构的 Yb₂Pt₂Pb 和 Yb₂Pt₂Al^[78-80]。我们之所以在众多几何阻挫金属中选择 CePdAl 进行研究,是因为 CePdAl 相对于其他重费米子材料有一个极大的优势:含有伊辛自旋的准二维几何阻挫晶格。这种伊辛自旋的准二维几何阻挫晶格是研究几何阻挫的理想体系。比如,该类体系中不会出现阻挫体系中常见的非共线磁结构,这种非共线的磁性结构将会极大地削弱自旋阻挫的强度^[7]。同时由于易磁化轴的存在,磁场对于自旋阻挫的调控将更加容易,因而大大提高了实验上对于几何阻挫效应进行调控控的可能性。本章将分为两个小节,2.1 章节将对 CePdAl 的研究背景进行介绍,包括几何阻挫导致的复杂磁结构研究以及初步的的量子临界行为研究,2.2 章节将介绍几何阻挫对基本物性的影响。

2.1 CePdAl 的研究背景

2.1.1 部分磁有序结构

早期关于 CePdAl 的研究主要集中于 CePdAl 的晶格结构以及低温下的复杂 磁结构^[67,68,113-116]。Hulliger 最早合成出了 CePdAl 多晶^[113],并对其进行了 x 射线 衍射实验,得出 CePdAl 的晶格结构属于六方晶格的 ZrNiAl 类型(空间群 *P62m*)。 三元稀土金属间化合物在低温下存在很多异常的磁性性质,比如重费米子体系中 的磁有序^[117]和反铁磁关联的三角晶格中的几何阻挫^[118],而上述两种异常性质同 时存在于 CePdAl 中,一方面 CePdAl 是一种反铁磁有序 (*T*_N = 2.7 K)的重费米 子金属化合物 (*γ* = 270 mJ/mol K²)^[119],另一方面,其 ZrNiAl 晶体结构 (图 2.1 (a))使得 Ce 原子形成三角晶格而引起几何阻挫。两者都会抑制磁有序的相变 温度,但实现的路径不同,重费米子体系是通过近藤效应屏蔽局域磁矩来抑制磁 有序的出现,而几何阻挫是通过自旋结构之间的量子涨落来抑制磁有序的生成,



(a) crystal structure of CePdAl

图 2.1 CePdAl 的晶格结构和磁结构^[67]

(a) CePdAl的 ab 面视角的晶体结构(ZrNiAl 类型)。原子的高度以(z/c)为单位。
虚线表示磁性 Ce 原子的三角晶格。(b) 1.3 K < T < 2.7 K 时 CePdAl的 ab 面上的磁结构,磁性 Ce 原子上的磁矩一部分有序(与 c 轴平行(+)或反平行(-)),另一部分无序(0)。晶体结构中的原胞用灰色突出显示。

Figure 2.1 The crystal structure and magnetic structure of CePdAl^[67]

(a) The crystal structure of CePdAl (ZrNiAl type) plotted as a view onto the hexagonal a–b plane. The heights of the atoms are in units of (z/c). Dashed lines illustrate the triangular lattice of the magnetic Ce atoms. (b) The basal plane of the magnetic structure of CePdAl for 1.3 K< T <2.7 K. The magnetic Ce moments are partly ordered (parallel (+) and antiparallel (–) to the c-axis) and partly disordered (0). The unit cell for the orthorhombic description of the crystal structure is highlighted by the grey colour.

两种效应同时存在将会使得 CePdAl 基态上出现异常复杂的磁结构。Dönni 等人 通过粉末中子衍射实验,得到 1.5 K 时 CePdAl 的磁结构^[67]。如图 2.1 (b) 所示, Ce(1)和 Ce(3)原子上的磁矩形成了磁有序,Ce(2)原子上的磁矩处于无序状态。有 序的 Ce 原子上的磁矩方向垂直于所在 ab 平面,沿着 b 轴形成铁磁链,相邻的铁 磁链自旋方向相反,沿着 a 轴反铁磁关联在一起形成反铁磁序。中间的无序 Ce(2) 原子将两条铁磁链分隔开。对于固定高度 (z/c) 的所有原子,振幅是恒定的,并 且根据波矢的非公度分量 τ 沿六角晶格中的 c 轴变化,在 T_N =2.7 K 以下形成了 波矢 k=[1/2,0, τ], $\tau \approx 0.35$ 的非公度反铁磁长程序。



图 2.2 CePdAl 在 30 mK 到 15 K 的温度区间内随温度变化的 T1⁻¹,磁场沿着 c 轴^[115] Figure 2.2 Temperature dependence of T1⁻¹ of CePdAl between 30 mK and 15 K. The applied magnetic field is along the c-axis^[115]

粉末中子衍射实验还显示了 CePdAl 在 600 mK 到 1.3 K 之间存在第二个磁性相变,但是并没能确定其磁结构。CePdAl 中是否存在第二个磁性相变以及第 二个磁性相是否跟 1/3 无序的 Ce 原子上的磁矩有关,这些问题在当时迅速引起 了广泛关注,紧接着,Kamioka 等人对 CePdAl 进行了 1 K 以下的 NMR 测量^[115], 在之前粉末衍射实验显示的第二个相变温度区域,²⁷Al 的自旋-晶格弛豫率 T_1^{-1} 没有发现任何异常,不支持反铁磁相变之下存在第二个磁相变。图 2.2 显示了自 旋晶格弛豫率 T_1^{-1} 与温度的依赖关系,随着温度降低到 30 mK,自旋-晶格弛豫 率 T_1^{-1} 在反铁磁相变 T_N 以下迅速减小,在 30 mK 和 2.7 K 之间没有任何明显异常。当磁场垂直于 c 轴时,在反铁磁相变温度以下,自旋-晶格弛豫率 T_1^{-1} 随着温度的降低而增加,当磁场沿着 c 轴时,在反铁磁温度以下,自旋-晶格弛豫率 T_1^{-1} 随着温度的降低而降低,这表明在 CePdA1 中反铁磁相变温度以下的磁性涨落有着很强的各向异性。0.4 K 以下的 $(T_1T)^{-1}$ 保持不变,这表明 CePdA1 在 0.4 K 以下进入费米液体态,因而 1/3 无序的 Ce 原子上的局域磁矩此时被完全屏蔽,因而即使到 0 K, CePdA1 仍然保持着部分有序,排除了在反铁磁相变以下出现第二个相变的可能。



图 2.3 CePdAl 中磁性波矢和局域磁矩随温度的变化^[66]

磁性波矢 k = [1/2, 0, τ]的非公度分量 τ 随着温度的变化,在 1.9K 以下保持不变 (•), CePdAl 中 Ce(1)和 Ce(3)原子上的局域磁矩随温度的变化 (•)。

Figure 2.3 Temperature dependence of the incommensurate component τ and magnetic moment for CePdAl^[66]

Temperature dependence of the incommensurate component τ of the magnetic propagation vector k = [1/2, 0, τ] for CePdAl, showing the lock-in behavior around 1.9K(•). Temperature evolution of the ordered magnetic moment of Ce(1) and Ce(3) in CePdAl (•).

之后更低温度的中子衍射实验也证明了反铁磁相变以下不存在其他相变^[66], 如图 2.3 所示,随着温度的降低,磁性波矢 k = [1/2, 0, τ]的非公度分量τ在反铁 磁相变位置有明显下降,在 1.9 K 附近锁定到特定的值 0.351,与此同时,CePdAl 中有序磁矩在反铁磁相变位置突然上升,在大约 1.8 K 以下保持不变。因而反铁 磁相变之下不存在第二个相变,之前所怀疑的第二个相变位置处仅仅为反铁磁有 序中的非公度分量 τ 发生微弱调制,锁定到了某一特定的值上。

2.1.2 初步的磁场和压力调控

最初关于 CePdA1 的磁场和压力调控的实验都是在多晶样品上进行的^[119-121], Tang 等人最早对多晶样品进行了静水压力下的比热测量^[120],他们发现在低压区 域 (*P*<0.5 GPa)反铁磁相变温度几乎不依赖压力变化,随着压力的增加变化比 较小,而在之上的压力区间内反铁磁相变温度随着压力增加迅速降低。随后 Isikawa 等人进行了化学压力(掺杂 Ni 来替代 Pd)下的比热测量^[121],在多晶样 品 CePd_{1-x}Ni_xAl 中发现当掺杂 12%的 Ni 时,比热 *C*/*T* 随着温度的降低一直上升 直到最低温 180 mK,这表明反铁磁有序在该掺杂浓度附近下已经完全消失。之 后 Fritsch 等人^[122]发现在掺杂 14.4%的 Ni 时,达到了反铁磁的量子临界点,他们 认为量子临界点处比热出现 *T*log(*T*₀/*T*)的温度依赖关系跟几何阻挫导致的 2D 的 磁性涨落有关。

Goto 等人最初开展了 CePdAl 单晶在磁场和压力调控下的磁性相变研究^[123], 他们的研究重心仍然在于该体系反铁磁被抑制时出现的量子临界点,他们认为在 临界压力 $P_c = 0.95$ GPa 时出现了压力下的量子临界点,而几何阻挫引起的量子 涨落对于形成量子临界点起到了重要作用^[123]。

他们测量了磁场和压力下的电阻率、磁化率和比热^[123]。图 2.4 (a) 中, 0.51 K时,磁化强度 M 随磁场的增加迅速增强,在 *B*_{c1} = 3.2 T, *B*_{c2} = 3.4 T 和 *B*_{c3} = 4 T 处出现了三个变磁性相变,分别对应于 29%、38%和 67%的饱和时的磁化强度。 图 2.4 (b) 中, CePdAl 在 0.6 K 时电阻率随着磁场增加很大,在第一个变磁性相 变 *B*_{c1} 处有略微的跳变,在经历第二个变磁性相变 *B*_{c2} 之前达到最大值,为 0 T 时电阻率的 2.2 倍,随后在第二个变磁性相变 *B*_{c2} 和第三个变磁性相变 *B*_{c3} 处突 然降低。磁化强度在第一个变磁性相变之前一直线性增加,这很大可能跟处于近 藤屏蔽状态的 1/3 无序的 Ce 原子有关,在 *B*_{c1} 处近藤屏蔽被打破, CePdAl 的磁 结构发生改变,紧接着在 3.4 T 到 4 T 之间不到 0.6 T 的范围内接连发生两个变 磁性相变,这表明该区域内的磁结构非常不稳定,自旋涨落在这一磁场区域内非 常强。



图 2.4 低温区域内 CePdAl 的磁化曲线和磁阻^[123]

(a) 0.51K 时 CePdAl 的磁化曲线,磁场方向沿着 c 轴。(b) 0.60 K 时 CePdAl 电阻率随磁场的变化,磁场和电流方向沿着 c 轴。

Figure 2.4 Magnetization curve and magnetoresistivity of CePdAl at low temperature^[123]

(a) Magnetization curve of CePdAl at 0.51 K, magnetic field direction along c axis.(b)
 Resistivity of CePdAl in magnetic field at 0.60 K, magnetic field and current direction along c axis.

压力下的比热如图 2.5 所示,0 GPa 处的比热峰出现在 2.7 K,对应于反铁磁相变。随着压力的增加,反铁磁相变温度一直往低温移动,表明反铁磁序被抑制。 在 0.83 GPa 时 0.4 K 以上反铁磁序消失。0.83 GPa 时, *C*mag/*T* 在低于 4 K 区域呈现-ln *T* 的温度依赖关系,1.3 GPa 时,*C*mag/*T* 随温度的下降缓慢增加。由以上反铁磁相变温度随压力的变化可以得到 CePdA1 零场下温度-压力相图,如图 2.6 所示,量子临界点出现的临界压力为 *P*c≈ 0.95 GPa。Goto 等人的结果表明 CePdA1 在磁场调控下,会出现连续的三个变磁性相变。结合后续的研究我们知道这是由 于几何阻挫的增强使得磁场下的磁结构处于不安定状态,改变很小磁场就会使得磁结构发生改变,所以在第一个变磁性相变之后又接连出现了两个变磁性相变。 另一方面,压力调控下的行为似乎比磁场调控更为简单。CePdAl 在压力的调控下,反铁磁相变逐渐被压制,在临界压力附近比热上出现明显的费米液体行为, Goto 等人认为在该体系中出现了典型的量子临界点。但是通过本论文所描述的更低温的实验表明,这并不是一个典型的量子临界点,而是一个展宽的"量子临界相",参考 5.2 章节。



图 2.5 CePdAl 中不同压力下 C/T 随温度的变化^[123]

Figure 2.5 Temperature dependence of C/T under different pressures in CePdAl^[123]



图 2.6 CePdAl 中的温度-压力相图^[123]

Figure 2.6 Temperature-Pressure phase diagram in CePdAl^[123]

2.2 CePdAl 的基本物性

二维几何阻挫结构: CePdAl 之所以能在众多重费米子材料中脱颖而出, 在于 它属于一类被称为 ZrNiAl 的晶体结构, 如图 2.7 (b) 所示。这一特殊的晶体结 构, 使得 Ce 原子在 ab 面上形成畸变的 kagomé 格子 (图 2.7 (a)), 沿着 c 轴重 复堆叠。Ce 原子在 ab 面内最近邻间距为 3.73 Å, 层间间距为 4.23 Å。其层间间 距远大于面内间距,属于准二维结构。当畸变的 kagomé 格子上的局域磁矩出现 反铁磁关联的时候,体系将进入自旋阻挫状态。表 2.1 和 2.2 给出了 CePdAl 的 基本信息和晶胞参数。



图 2.7 (a) Kagomé 格子(b) CePdAl 的三维结构图

Figure 2.7 (a) Kagomé lattice (b) Three dimentional structure of CePdAl

表 2.1 CePdAl 的基本信息

Table 2.1 General information of CePdAl

名称	具体信息
分子式	CePdAl
结构类型	ZrNiAl
晶系	六方
空间群	P-62m (189)
化合物类型	金属间化合物
相对分子质量	273.15g/mol

晶胞参数	具体数值
a	0.7214 nm
b	0.7214 nm
c	0.4231 nm
α	90°
β	90°
γ	120°
a/b	1.000
b/c	1.705
c/a	0.586
V	0.1907 nm ³

表 2.2 CePdAl 单晶的晶胞参数

Table 2.2 Cell parameters of CePdAl

本论文中所研究的 CePdAl 材料是日本富山大学 Yosikazu Isikawa 研究组提 供的单晶样品,该 CePdAl 单晶是由提拉法生长而成。在开始低温物性测量之前, 我们首先对 CePdAl 样品进行了单晶 x 射线衍射实验,以确定单晶的样品质量和 晶向。图 2.8 给出了单晶 x 射线衍射的实验结果,我们的单晶样品在(001) 晶 面上呈现出非常强的 x 射线衍射峰,这表明我们测量使用的 CePdAl 样品有着很 好的单晶质量。



图 2.8 CePdAl 单晶在(001) 晶面上的 x 射线衍射峰

Figure 2.8 The x-ray diffraction from the (001) plane of the CePdAl single crystal

CePdAl 中的自旋为伊辛自旋,这一点从图 2.9 可以看出来。该图给出了 c 轴和 ab 面内随温度变化的直流磁化率。 $T_{\rm N} = 2.7$ K 时, $\chi_c = 0.091$ emu/mol, $\chi_{ab} = 0.0063$ emu/mol, $\chi_c/\chi_{ab} \approx 14$, 而 χ_c/χ_{ab} 在低温区域的最大值可以达到 22 左右。巨大各向异性反映出 CePdAl 的易磁化轴沿着 c 轴方向,自旋的朝向只能沿着单一的 c 轴方向,因而 CePdAl 中的自旋可以被认为是伊辛自旋。在 CePdAl 中, Ce³⁺离子处于点群为 m2m 的对称结构,由于晶体场的劈裂效应,导致洪特规则影响下的 J=5/2 多重态进一步劈裂,在基态形成 Kramers 双重态。因而,一般认为,CePdAl 中的自旋为等效自旋为 1/2 的伊辛自旋。



图 2.9 c 轴和 ab 面内随温度变化的直流磁化率

Figure 2.9 Temperature dependence of DC suscepetibility in c axis and ab plane

如图 2.10(a) 所示,我们对 12 K 到 25 K 顺磁区域内的比热用以下公式

 $C/T = \gamma_p + \beta T^2 \dots (2.1)$

进行拟合,估算得到的电子比热系数 $\gamma_{p} \approx 78 \text{ mJ/mol K}^{2}$,这与文献中 CePdAl 多 晶样品得到的 $\gamma_{p} \approx 75 \text{ mJ/mol K}^{2}$ 非常接近^[119]。极低温的比热数据表明,在 0 K 处 $\gamma_{0} \approx 250 \text{ mJ/mol K}^{2}$ (图 2.10 (b)),因而 CePdAl 属于电子有效质量处于中等程度 的重费米子体系。如图 2.10 (b)所示,在低温区域内比热在 $T_{N}=2.7 \text{ K}$ 处出现 λ 形峰,对应于二级的反铁磁相变,该 λ 形峰的尾巴并不像一般的磁性重费米子体 系中那样在相变温度附近很快消失,而是一直持续到 8 K 附近才消失,这表明在 反铁磁相变之上的温度区域仍然存在很强的自旋关联。在反铁磁相变 T_{N} 处磁熵 仅仅达到 0.41*R*ln2,我们的结果与之前文献中多晶样品在 T_{N} 处磁熵仅仅达到 0.38*R*ln2 是一致的^[123]。 T_{N} 处磁熵远小于 *R*ln2 的原因,可能跟近藤效应以及反铁 磁相变之上存在的短程关联有关。这一现象在一定程度上也反映了在反铁磁相变 之上几何阻挫起着重要作用,几何阻挫导致的短程自旋关联态保留了很大一部分 自旋熵。



图 2.10 (a) 2-100 K 温度范围内 CePdAl 的比热 C/T 随温度的平方的变化关系 (b) 低温区域内电子比热 C44/T 和熵随温度的变化

Figure 2.10 (a)Temperature dependence of the heat capacity of CePdAl revealed as C/T vs T^2 (b) Temperature dependence of electronic heat capacity and entropy at low temperature

随温度变化的电阻率表现出磁性近藤格子体系特征,0T时在20K附近电阻率上出现极小值,紧接着以-lnT的形式上升,这种电阻率上出现的-lnT的形式,表明近藤效应开始出现。电阻率在 $T_m \approx 4$ K(图2.11 黑色虚线)附近出现宽峰,随后电阻率温度 $T_N = 2.7$ K。此时电阻率突然下降,对应于电阻率对温度的一阶导数上在 $T_N = 2.7$ K处出现的异常,如图2.11 红色虚线位置所示。



图 2.11 CePdAI 的电阻率以及电阻率对温度的一阶导数随温度的变化

T_m表示开始进入短程关联态的温度,T_N代表反铁磁相变温度,T₀表示部分近藤屏蔽 发生的温度。

Figure 2.11 Temperature dependence of the electrical resistivity ρ and derivative of the resistivity $d\rho/dT$ for CePdAl

 $T_{\rm m}$ represents the temperature at which the short-range correlation state begins to set in, $T_{\rm N}$ represents the antiferromagnetic phase transition temperature, and T_0 represents the temperature of partial Kondo screening.

更为异常的是在 T_N =2.7 K 以下位置处,电阻率对温度的一阶导数 dp/dT 上 在 T_0 ≈1.8 K 附近出现的极大值。对低温区域内零场下的电阻率 ρ 对温度 T 进行 幂指数拟合,得到指数 n 为 2.5,而在重费米子体系的反铁磁有序态内电阻率上 一般出现类似费米液体行为,即电阻率指数 n=2,这种指数出现大于 2 的情况, 表明在反铁磁有序态内还存在着其它散射对电阻率的贡献。同时与之相对应的, 从比热 C/T 的 λ 形峰上也可以看出,其左右两边是不对称的,在 T_0 =1.8 K 附近 出现微弱鼓包结构,如图 2.10 (b)所示。电阻率和比热上出现的这种微弱异常 结构,明显不符合相变的特征,更像是相过渡。而在之前的文献中已经讨论过在 反铁磁有序态内是否还存在其他相变,在中子散射实验中已经证实,反铁磁相变 之下不存在其他相变,1.8 K 处的异常对应于 CePdAI 中部分 Ce 原子的近藤屏蔽 过程^[115],此时处于无序状态的 1/3 的 Ce 原子开始完全被近藤屏蔽,这与我们的 结果是相一致的。

36





图 2.12 给出了 CePdAl 的直流磁化率随温度的变化,测量磁化率时所加的磁 场为 0.1 T。可以看出, CePdAl 的直流磁化率开始随着温度的下降而上升,在 T_m ≈4K 附近出现极大值,在 T_m 以下随着温度的下降而降低,这些行为与电阻上的 行为非常类似。 T_m 附近出现宽峰是因为 CePdAl 中自旋之间出现了反铁磁关联, 因而直流磁化率开始降低。而在真正出现长程反铁磁有序的温度 T_N = 2.7 K,直 流磁化率表现为下降最快的位置,对应于直流磁化率对温度的一阶导数 $d\chi/dT$ 上 出现的极大值。这清楚的表明反铁磁关联出现的温度要高于长程反铁磁有序出现 的温度,在没有几何阻挫存在的反铁磁重费米子体系中,直流磁化率上出现极大 值的位置即为反铁磁相变的位置,不存在两者的分离。因而 CePdAl 的直流磁化 率上的异常行为与几何阻挫抑制长程磁有序态的形成有关,在 T_m 和 T_N 之间,存 在着与几何阻挫有关的短程自旋反铁磁关联态。

第3章 实验方法

3.1 极端环境实验条件

本论文中的实验主要是在 Quantum Design 公司的综合物性测量平台(PPMS) 和牛津仪器公司的 ³He-⁴He 稀释制冷机平台上完成的,少部分的直流磁化率测量 是在 Quantum Design 公司的磁性测量平台(MPMS)上完成的。PPMS 和 MPMS 已经是非常普遍的低温测量设备,所以在本文中不再进行赘述。接下来我们简单 介绍在 ³He-⁴He 稀释制冷机上实现的极低温、强磁场以及高压下的输运、磁性以 及超声波测量。

3.1.1 极低温

³He-⁴He 稀释制冷机可以实现最低温度接近 10 mK 的极低温工作环境,是研 究绝对零度附近的量子临界行为的重要低温设备。London 等人最早给出了稀释 制冷机的原理模型^[124],1966 年 Neganov 等人^[125]和 Hall 等人^[126]分别独立的制造 出了最早的稀释制冷机。

稀释制冷机的工作原理跟 ³He 和 ⁴He 的混合液的特性有关^[127]。在介绍稀释 制冷机之前,我们首先要了解 ³He 和 ⁴He 的混合液的相图^[126,128,129]。如图 3.1 所 示,在 0.86 K 以下, ³He 和 ⁴He 的混合液分为两相,其中一相 ³He 的浓度高,另 一相 ³He 的浓度低^[129]。而在混合相之上,根据 ³He 的浓度不同,分为超流相和



图 3.1 ³He 和 ⁴He 的混合液的相图, x 代表 ³He 的浓度^[128]

Figure 3.1 The phase diagram of ³He/⁴He mixtures, x is the ³He concentration^[128]

正常液体相。由于两相的密度不同,³He 的浓相浮在 ³He 的稀相之上。假设从相 图中超流相的某一点(*T*, *x*)开始降温,保持 ³He 的浓度 *x* 不变,当到达相图中 的(*T'*, *x*)位置时,两相开始形成。当进一步从*T'*降温到*T''*的时候,下层 ³He 的稀相沿着混合曲线往左移动到(*T''*, *x*D''),上层 ³He 的浓相沿着混合曲线往右 移动到(*T''*, *x*c''),当温度达到 0.1 K 时,*x*c''≈1,即上层 ³He 的浓相几乎完全 为 ³He 的正常液体相,而下层 ³He 的稀相中 ³He 的浓度 *x*D''≈0.07 (*x*D''≈0.064, *T*=0 K)。稀释制冷机能够达到 10 mK 量级的极低温就是利用了 ³He 和 ⁴He 的混 合液的这一特性,通过将稀相中的 ³He 抽取出来,浓相中的 ³He 将会不断的扩散 进入稀相之中,因而在两相的界面处一直在发生浓相到稀相的相变过程,利用相 变吸热来达到制冷效果。

稀释制冷机真正实现极低温的过程要比以上的工作原理复杂的多,具体的过程如图 3.2 所示^[128]。³He 和 ⁴He 的混合气体在之前首先经过了液氮冷阱和液氮冷阱,此时温度降到 4.2 K 附近,该初步制冷过程在图 3.2 中没有展示。紧接着经过1 K 液池(⁴He pot)进一步冷却,在该处混合液的温度被降到 1 K 到 2 K 左右,此时 4He 已经处于超流状态,然后开始冷凝过程,之后经过蒸发室热交换器



图 3.2 稀释制冷机工作时的流程图^[128]

Figure 3.2 The parts of a continuously operationg dilution refrigerator^[128]

(still heat exchanger)(0.6-0.8 K)、连续热交换器(continuous heat exchanger) 和分步热交换器(step heat exchanger),进入混合室(mixing chamber)时混合液 的温度已经降低到 0.5 K 以下了。混合相是在混合室(mixing chamber)中形成 的,混合室中 ³He 的稀相连通到蒸发室中,在 0.6-0.8 K 的蒸发室中 ³He 的蒸汽 分压强是 ⁴He 的 100-1000 倍,通过真空泵抽取的气体主要是 ³He,使得稀相中 的 ³He 的浓度连续降低,导致在混合室中的相边界处连续发生 ³He 的浓相到稀相 的相变过程,因而混合室是稀释制冷机的最冷端,可以达到 10 mK 左右的极低 温环境。图 3.3 展示了我们实验室中的稀释制冷剂的实物图。





Figure 3.3 Photograph of the dilution refrigerator in our lab

3.1.2 强磁场

我们的³He-⁴He 稀释制冷机平台还搭配了牛津仪器公司的超导磁体,可以对 实验样品在单一轴向施加最高磁场可达 14 T 的强磁场。超导磁体相比于普通磁 体来说,最大的优势在于,提供强磁场的同时不会产生由电阻引起的热量耗散, 因而可以在极低温环境中提供强磁场。我们在实际运行过程中,稀释制冷机达到 30 mK 左右的温度时,在施加强磁场的过程中,由于涡流效应的影响,系统的最低温度可能会发生 10 mK 左右的变化。实际的温度变化量和磁体励磁的速率也有很大关系。在测量过程,我们一般选取尽可能小的励磁速率,约 20 Oe/s。极低温和强磁场条件使得研究零温附近磁场诱导的量子相变成为可能。

3.1.3 高压

我们在稀释制冷机平台上,单独设计了可以安装压力腔的样品杆,结合压力 腔,实现了静水压力最高可达 3 GPa 的高压环境,同时最低温度可以达到 60 mK 左右。图 3.4 展示了实验中使用的压力腔的实物图,该压力腔外层是 CuBe 合金, 内层提供压力部分为 NiCrAl 合金,样品密封在 Teflon 管中,压力介质为丙三醇 (甘油),该介质可以在低温环境中提供很好的各向同性的静水压力。样品完全 浸没在甘油之中,放在自制的绝缘铜丝样品托。该样品托一方面可以给样品提供 很好的支撑,来确定压力腔内样品的轴向,另一方面可以保证样品和压力腔有着 很好的热接触,使得样品实际温度与压力腔表面的温度计所测量的温度尽可能接 近。



图 3.4 提供静水压力的压力腔实物图

Figure 3.4 Photograph of the pressure cell providing hydrostatic pressure

对于压力腔内的实际压力的校准,我们采用的方法是测量锡(Sn)的超导。 在压力腔内随样品一起放置了一个自制的含锡的线圈,可以很敏感的测出锡发生 超导相变时的抗磁信号,每次加压完成之后,通过测量锡的超导温度来确定此时 的压力^[130]。例如,图 3.5 给出了我们在第九次加压实验测量得到的锡的超导温 度。该压力下锡的超导温度 $T_c = 2.83$ K,根据以下公式:

$$T_c(P) = T_c(0) - 0.4823P + 0.0207P^2 \dots (3.1)$$

其中 $T_{c}(0) = 3.73$ K,得到第九次加压压力腔内的实际压力为 $P \approx 2.1$ GPa。



图 3.5 压力下的交流磁化率上锡的超导相变信号

3.2 物性测量方法

低温下的电输运测量和磁性测量是研究量子相变以及量子临界行为的有效 手段。极低温环境,配合磁场和压力这些非热学的调控参数,使得研究基态上不 同量子态之间的演化过程成为可能。我们结合极低温、强磁场和高压这三个极端 实验条件,对 CePdAl 单晶样品进行了详细的电输运和磁性测量。电输运测量包 括电阻和霍尔测量:前者可以敏感地反应量子临界处非费米液体行为,是非常普 遍的电输运测量方式,而后者可以研究量子临界附近费米面的变化。比如,在对 于 YbRh₂Si₂ 的研究中,人们通过霍尔系数的变化来表征量子临界点处费米面的 突变行为^[30]。由于极端条件的限制,在磁性测量方面我们只开展了交流磁化率的 测量。我们还发展了超声波测量技术,来应用于几何阻挫金属体系中的量子临界 研究。下面我们将对以上的测量方式进行逐一介绍。

3.2.1 电输运测量

电阻测量采用标准四电极法方式,如图 3.6(a)所示。相对于两电极法测电

Figure 3.5 The signal of superconducting phase transition for Sn in AC susceptibility under pressure

阻,四电极法可以有效的避免导线电阻对于样品电阻的影响,因而是测量微小电 阻的普遍方法。对于四电极法中的电极一般采用银胶粘连的方式。不过,对于极 低温测量来说,为了尽可能避免接触电阻过大而引起加热效应,我们对于电极采 用点焊焊接的方式。四电极法测量电阻应使得两个电压电极尽可能的距离远,来 提高电阻测量的准确性。在对 CePdAl 的实际低温测量过程中,我们施加电流大 小的范围为100μA-1mA,施加电流方向垂直于 c 轴方向,施加磁场方向平行于 c 轴。我们对电阻测量分别进行了不同温度下扫场测量和不同磁场下的扫温测量, 在 ³He-⁴He 稀释制冷机平台上对电阻进行的扫温测量统一为降温测量。

霍尔测量也采用四电极法方式,如图 3.6(b)所示。两端的电压电极应尽可能的对齐,但是实验中很难达到理想的状况,在实际的测量值可能包含霍尔电阻和磁阻两部分,因而需要对正负磁场进行测量,来扣除磁阻部分。



图 3.6 (a) 四电极法测量电阻示意图和实物图(b) 四电极法测量霍尔示意图 和实物图



3.2.2 交流磁化率测量

交流磁化率采用了自制的交流磁化率线圈,该线圈是由外部的初级线圈和内部的次级线圈组成,次级线圈由两个绕向相反,圈数相同的小线圈拼接而成,来抵消次级线圈自身产生的励磁信号,测量时样品放置于次级线圈其中一个小线圈的中心位置,如图 3.7 所示。



图 3.7 交流磁化率线圈示意图和实物图

Figure 3.7 Schematic and physical diagram of AC susceptibility coil

利用锁相放大器可以得到交流磁化率的实部和虚部,实部代表磁化强度曲线 的斜率,虚部表示材料的交流损耗。由于自制的交流磁化率线圈测量得到的信号 存在背底信号,所以本研究中我们只通过交流磁化率来确定相变的位置,以及磁 化强度随温度或磁场的演化趋势,不考虑其绝对值。这已经基本满足了我们实验 上的要求。

3.2.3 超声波测量

超声波技术是探测材料弹性的有效手段。压电陶瓷片 LiNbO₃ 用来产生横波和纵波,我们在本实验中所使用的声波传感器的基本共振频率在 5-30 MHz 之间。测量时将其平行地粘在样品的两个对应表面分别用来产生超声波和探测超声波。通过比较参考信号和样品中反射信号的相位差,可以估计声速的变化。声速的相对变化 $\Delta v/v = \Delta f/f - \Delta \varphi/\varphi$,其中 $\Delta f/f$ 为频率的相对变化, $\Delta \varphi/\varphi$ 为相位的相对变化。 根据相位比较原理,通过保持参考信号和样品中反射信号的相位不动,可以用超声频率的相对变化 $\Delta f/f$ 来反应声速的变化 $\Delta v/v$,此时 $\Delta \varphi/\varphi = 0$ 。弹性常数可以进一步通过公式 $C = \rho v^2$ 求得,其中 ρ 为晶体密度,最终得到晶体弹性常数的相对变化。

图 3.8 显示了相位比较法测量声波的示意图。用两个微小 LiNbO₃ 等压电陶 瓷片(2 mm 直径大小)夹住样品测量,一个产生超声波,穿过样品,另一个探 测出射超声。对比通过样品和未通过样品参考信号的位相变化,得到超声在样品

45

中的传输速率的微弱变化和衰减程度^[131]。该技术可以在极限条件下使用,可以 适应强磁场、极低温和高压,并且可以变换声波模式。



图 3.8 采用相位比较法进行超声波探测的示意图^[131] Figure 3.8 Schematic diagram of ultrasound measurement by phase comparison method^[131]

超声波测量根据声波的不同可以分为两种模式:横波模式和纵波模式。结合样品的晶格对称性,两种声波模式可以测量不同的弹性常数。CePdA1 是六方晶格结构,六方晶系中存在六个独立的弹性常数: C11,C12,C13,C33,C44和C66。 CePdA1 中几何阻挫结构是在 ab 面内,根据这一结构特点,本研究中我们选择以下三个弹性常数进行测量: C11(传播方向沿着 a 轴的纵波模式),C33(传播方向沿着 c 轴的纵波模式),C66(传播方向沿着 a 轴,振动方向在 ab 面内的横波模式)。

第4章 磁场诱导的量子顺磁相

4.1 引言

在具有几何阻挫的金属体系中,由于存在局域磁矩和传导电子之间的耦合作 用,因而局域磁矩的大小可能会发生改变,进而影响阻挫效应。比如在伊辛自旋 的三角格子中,通过改变一个格点处局域磁矩的大小,可以消除几何阻挫效应, 形成磁性格点和非磁性格点混合的部分磁有序基态,如图 4.1 所示。根据第二章 的介绍,我们知道 CePdAl 的基态上形成了部分反铁磁有序态,即 2/3 的 Ce 原子 形成了磁有序,1/3 的 Ce 原子上的局域磁矩处于近藤屏蔽状态^[67,68,132]。最初理 论上讨论 CePdAl 的磁结构时没有考虑近藤效应,认为 1/3 的 Ce 原子处于无序 状态。之后,更低温的中子衍射和 NMR 实验证明了在反铁磁之下 1.9 K 附近存 在一个过渡区,被认为跟 1/3 的 Ce 原子被近藤屏蔽有关,基态上 1/3 的 Ce 原子 处于费米液体态,形成了阻挫影响下的安定的部分磁有序态。



图 4.1 金属体系中磁性格点和非磁性格点混合的部分磁有序

在近藤体系中, 非磁性格点起源于近藤屏蔽效应。

Figure 4.1 Partial magnetic order with magnetic sites and non-magnetic sites in metal

Non-magnetic sites originates from Kondo screening in the Kondo system.

通过调控几何阻挫的强度改变基态,探索新型的量子临界行为和新型量子态 是我们要研究的核心问题。针对 CePdAl 中二维几何阻挫平面上的伊辛自旋,沿 着易磁化轴 c 轴方向施加磁场,可以使得处于无序状态的 1/3Ce 原子局域磁矩打 破近藤屏蔽状态,增强几何阻挫,抑制反铁磁长程序的发生。由于强阻挫效应的 存在,此时基态上有可能产生新颖的量子态。依据该思路,本章中我们将介绍利 用磁场这一非热力学调控参量调控 CePdAl 基态的实验结果:我们观测到了一个 介于磁有序和费米液体态之间的量子顺磁态,这一量子顺磁态是首次在该体系中 被发现。

4.2 实验结果

本章分为四个部分。首先我们从电输运性质和磁性性质上,对 CePdAl 在磁场调控下的复杂相变进行描述,同时对磁场诱导的量子顺磁态的实验证据进行介绍。最后介绍其他研究小组从极低温比热性质上得到的相图以及关于量子顺磁态的一些争议。

4.2.1 磁场下的电输运性质

不同温度下磁阻的变化如下: 1 K 以下的电阻在 3 T 到 5 T 的磁场区间内呈 现类似于 π 形的变化,如图 4.2 (a)所示,跟文献中 0.6 K 时的磁阻变化是一致 的^[123,133]。在电阻率对磁场的一阶导数 $d\rho/dB$ 上, 0.1 K 时随着磁场的增加在 B_{ab} ≈ 3.4 T、 B_{bc} ≈ 3.6 T 和 B_{cd} ≈ 4.2 T 位置出现了三个明显的尖峰, 对应于三个变磁 性相变位置^[123]。这三个位置处的尖峰随着温度增加,峰的特征越来越弱,在1K 以上所有的三个峰全部消失,表明三个变磁性相变仅仅出现在1K以下的低温区 域。CePdAl在0T时的基态为部分有序的反铁磁态[66-68,132],电阻率在 Bab之前的 磁场区域表现为很典型的反铁磁有序被磁场抑制的行为,即随着磁场增加,电阻 率一直增加。电阻率 ρ 在 B_{ab} 处电阻率上出现明显转折,并且在 B_{bc} 处电阻率达 到最大值。紧接着在 B_{bc} 和 B_{cd} 位置处电阻率发生跳变,在 B_{cd} 之后迅速减小。 B_{ab} 处的电阻率的变化被认为跟 CePdA1 中 1/3 的 Ce 原子上处于近藤屏蔽状态的局 域磁矩有关,之前文献中0.51K时CePdAI的磁化曲线在Bab处达到饱和时的29% 左右^[123],这表明在 B_{ab} 处 1/3 的 Ce 原子上的局域磁矩所处的近藤屏蔽状态被打 破。而之后两个磁场 B_{ab} 和 B_{cd} 位置处的电阻率的跳变则对应于自旋翻转(spinflip)类型的变磁性相变。比较异常的是,在 Bab 和 Bcd 之间的磁场区域内电阻率 的大小几乎不随磁场变化,出现类似平台的形状,这表明这一磁场区域内的磁有 序几乎不受磁场的影响,这一行为不符合一般的磁有序中电阻率随磁场的变化规 律,同时在这一磁场区域内的电阻率是0T时电阻率的1.7倍左右,是6T时电 阴率的5倍左右,这些异常的行为很可能跟几何阻挫有关,几何阻挫诱导的量子 涨落使得该磁场区域内的电子散射增强,因而在这区域内有着很大的电阻率。同



图 4.2 (a) CePdAl 在不同温度下随磁场变化的电阻率(b) 不同温度下电阻率对磁场的 一阶导数(c) 0.1 K 时升降场的电阻率

Figure 4.2 (a) Magnetoresistivity of CePdAl at different temperatures (b) The first derivative of magnetoresistivity at different temperatures (c) A round-trip field scan of the resistivity at

T = 0.1 K

时几何阻挫会使得磁结构处于不安定的状态,很容易发生变磁性相变。这表明几何阻挫效应在磁场的调控下逐渐增强,与我们最初利用磁场调控几何阻挫强度的 设想是一致的。在 Bab和 Bcd之间的磁场区域内电阻率在升降场时有明显的回滞, 表明在 Bab, Bbc和 Bcd位置处出现的尖峰对应于一级相变, 这与自旋翻转类型的 变磁性相变一般为一级相变的情况是吻合的。

以上的实验结果与之前的研究都是一致的,需要强调的是,文献中关于 CePdAl 在磁场下的调控研究集中于磁有序区域内的连续变磁性相变^[123,133,134], 而我们的研究重点并不是在磁有序区域内,相反的,我们希望能够利用磁场调控 几何阻挫强度,来抑制长程磁有序,形成由几何阻挫起主导作用的新奇量子态。 从电阻率上可以看到,在低于 0.4 K 以下,电阻率在第三个变磁性相变 *B*_{cd} 位置 发生突然跳变之后,紧接着出现明显的偏折,对应于图 4.2 (b)中 0.4 K 以下 *B** 位置处出现的鼓包,并且随着温度的降低,鼓包变得更加明显。电阻率上的这一 异常结构被认为跟局域磁矩形成的量子顺磁态有关,这种局域磁矩形成的量子顺 磁态既不符合磁有序的特征,也不符合费米液体态的特征,这是之前文献从未报 道过的。

图 4.3 给出了不同磁场下随温度变化的电阻率。0 T 时随温度变化的电阻率 在 $T_m \approx 3.8 \text{ K}$ 附近达到极大值,随后开始降低,如图 4.3 (a)中所示。 T_m 处的宽 峰代表了近藤晶格的形成^[119,135],此时局域磁矩开始产生关联。但由于几何阻挫 的存在并没有立即形成长程反铁磁有序,而是进入了有着自旋关联的短程态^[136], 在 $T_N = 2.7 \text{ K}$ 才开始进入长程反铁磁有序,与之对应的,电阻率在 T_N 之下急剧 减小,电阻率对温度的一阶导数 $d\rho/dT$ 在 $T_N = 2.7 \text{ K}$ 附近出现异常,如图 4.3 (b) 中黑色箭头所示。更为出人意料的是,在 T_N 之下, $d\rho/dT$ 在 $T_0 = 1.8 \text{ K}$ 附近又出 现新的异常,如图 4.3 (b)中红色箭头所示。之前中子衍射实验表明在 T_N 之下 磁性波矢依然随温度变化,而在 1.9 K 以下保持锁定状态^[66],而 ²⁷Al NMR 实验 表明在 T_N 之下,1/3 无序态的 Ce 原子最终被近藤屏蔽,形成了重费米液体态^[132], 因而 $d\rho/dT$ 在 1.8 K 附近出现的异常,很可能与 1/3 无序态的局域磁矩开始发生 近藤屏蔽有关。随着磁场的增加, T_m 、 T_N 和 T_0 都开始往低温移动,这表明与反 铁磁长程序一致的,短程关联态和近藤屏蔽状态同时被磁场所抑制。随着磁场的 增加,这三者并没有被连续的抑制到 0 K,而是在有限温度处消失,同时在 B_{ab} 、

50



图 4.3 CePdAl 的电阻率(a)和电阻率对温度的一阶导数(b)在不同磁场下 随温度的变化

磁场方向沿着 c 轴, T_m为进入短程有序的过渡温度, T_N为反铁磁相变温度, T₀为部分 无序状态的局域磁矩开始被近藤屏蔽的温度。

Figure 4.3 Temperature dependence of resistivity(a) and the first derivative of resistivity(b) for CePdAl at different magnetic field

The field is along c-axis, T_m is the crossover temperature to enter the short-range order, T_N is the temperature of antiferromagnetic phase transition, and T_0 is the temperature at which the local magnetic moment of partially disordered state begins to be Kondo screened.

B_{bc}和 B_{cd}三个位置出现了一级的变磁性相变,因而低温区域内出现的三个变磁性相变很可能是由 T_m、T_N和 T₀在磁场中演化而来的。对应于变磁性相变区域,在 3.5 T 和 4.25 T 之间的磁场下,电阻率在低温区域出现了显著的异常,如图 4.3
(a)中紫色箭头所示。这些电阻率上的异常位置对应于低温下的变磁性相变,

这与之前低温区域电阻率随磁场的变化是相一致的。

高于 4.22 T 的磁场下,电阻率 $\rho(T)$ 上低温区域的异常消失,与第三个变磁性 相变位置 B_{cp} =4.2 T 相一致,因而在之上的磁场区域,磁有序完全消失。但是在 磁有序消失的磁场区域内,并没有立即进入费米液体态,如图 4.4 所示。磁场在 4.8 T 之后,电阻率随温度的变化才呈现温度平方的线性依赖关系,这表明在 4.8 T 才开始进入费米液体区域,而在 4.22 T 和 4.8 T 的磁场区域内,CePdAl 的基态 既没有形成磁有序,也没有形成费米液体态。在这一区域内,100 mK 时测量的 随磁场变化的电阻率在 B_{cp} 之后出现了鼓包结构,同时随温度变化的电阻率的指 数 n 介于 2 到 3 之间。这些异常行为很可能表明 CePdAl 在磁场中出现了介于磁 有序和费米液体态之间的奇异的量子顺磁态。



图 4.4 CePdAl 在 4.4 T-7 T 的磁场下随温度变化的电阻率,以双指数的形式来表示,其中插图是在费米液体区域内的电阻率系数 A 随磁场的变化

Figure 4.4 Temperature dependence of resistivity for CePdAl between 4.4 T and 7 T in double-logarithmic representation. Inset is the change of resistivity coefficient *A* with magnetic field in Fermi liquid region

霍尔系数 dpxy/dB 也在三个变磁性相变之后的 B*处出现了明显异常,如图 4.5 所示,这与之前电阻率的结果是一致的。在 B*左右两侧,霍尔系数上有着明显变 化,表明费米面在左右两边的区域内出现了明显变化,这被认为跟 f 电子的退局 域化有关^[2,30]。因而在第三个变磁性相变 B_{cp}和 B*之间磁场区域内 f 电子仍然是 局域的,这些局域磁矩并没有形成磁有序,而是形成了一种奇异的量子顺磁态。



图 4.5 (a) CePdAl 在 0.08 K 到 4 K 之间不同温度下霍尔电阻率 ρ_{xy} 随磁场的变化 (b) CePdAl 在 0.08 K 到 4 K 之间不同温度下霍尔系数 dρ_{xy}/dB 随磁场的变化 1 K 以下低温区域出现的三个变磁性相变分别用 B_{ab}, B_{bc} 和 B_{cp}来表示, 1 K 以上出现 极大值的位置为反铁磁的临界磁场,用 B_N来表示, B*线表示近藤破坏发生的位置。

Figure 4.5 (a)Magnetic field dependence of hall resistivity ρ_{xy} for CePdAl at different temperatures between 0.08 K and 4 K (b)Magnetic field dependence of hall coefficient

$d\rho_{xy}/dB$ for CePdAl at different temperatures between 0.08 K and 4 K

Three metamagnetic phase transitions show as B_{ab} , B_{bc} and B_{cp} in low temperature region below 1 K. The Néel critical field B_N are indicated, as well as the $B^*(T)$ line related to Kondo breakdown.

4.2.2 磁场下的磁性性质

我们进一步对 CePdAl 进行了磁场下的交流磁化率测量。在低于 0.9 K 之下的温度区间内,交流磁化率同样在 Bab, Bbc 和 Bcp 位置处出现三个一级变磁性相



图 4.6 (a) CePdAI 的交流磁化率的实部在不同温度下随磁场的变化(b) CePdAI 的交流磁化率的实部在不同磁场下随温度的变化

Figure 4.6 (a) Magnetic field dependence of the real part of AC susceptibility for CePdAl at different temperatures (b) Temperature dependence of the real part of AC susceptibility for CePdAl at different magnetic field

变,如图 4.6 (a)所示。而在低于 0.5 K 以下的温度区间内,在三个变磁性相变 之后交流磁化率上在 *B**处出现了鼓包结构,并且温度越接近 0 K,鼓包结构越明 显,这与电阻率上的行为是一致的。如图 4.6 (b)所示,0 T 时的交流磁化率在 *T*m处出现宽峰,此处为反铁磁关联开始形成的位置,反铁磁长程序在 *T*N 以下出
现,反铁磁相变的温度 *T*_N低于反铁磁关联出现的 *T*_m,表明几何阻挫效应抑制了 长程反铁磁序的生成,因而在 *T*_m和 *T*_N之间的温度区间内可能存在自旋关联的短 程序。

在*B*_{cp}和*B**之间的磁场区域内,随温度变化的交流磁化率表现出异常的行为,如图 4.6 (b)所示。交流磁化率开始随着温度的降低一直升高,在图 4.6 (b)中 红色箭头所示温度之下,呈现出不依赖温度变化的行为。这些行为既不符合磁有 序的特征,也跟费米液体区域完全不依赖温度变化的行为存在差异。这表明 CePdAl 的基态在磁场的调控下,出现了介于磁有序和费米液体中间的量子顺磁 态。



4.2.3 磁场下的热力学性质

图 4.7 CePdAl 常压下比热在不同磁场下随温度的变化

Cel uni at ambient pressure

我们对 CePdAl 进行了 2 K 以上的比热测量,如图 4.7 所示。0 T 时比热在 *T*_N = 2.7 K 处出现反铁磁相变峰,随着磁场的增加,反铁磁有序被抑制,3 T 时反铁 磁相变温度已经低于 2 K。而在更高的磁场,此时磁有序被完全抑制,6 T 时比 热在 2.3 K 附近出现宽峰,且随着磁场的增加,宽峰位置高温移动,这一宽峰类 似于肖特基比热峰,跟磁场中的塞曼效应引起的能级劈裂有关^[136]。之后日本东 京大学研究小组^[137]以及德国马克斯普朗克研究所研究小组^[136]几乎在同一时期 发表了 CePdAl 在磁场下的极低温比热测量结果。在此,我们只给出了日本研究

Figure 4.7 Temperature dependence of the heat capacity at different magnetic field for CePdAl at ambient pressure

小组的比热测量结果。如图 4.8 (a) 所示, 0.34 K 时随磁场变化的比热 C/T 在 B_{m1} 、 B_{m2} 和 B_{m3} 处出现了异常, 对应于三个变磁性相变, 这与我们在电阻率、霍 尔电阻率以及交流磁化率上的测量结果是一致的。在变磁性相变之后,比热上并 没有观察到任何新的异常, 而在我们之前的电输运和磁性测量结果中, 在第三个 变磁性相变之后还出现了新的异常。不同磁场下随温度变化的比热, 如图 4.8(b) 所示。在 3 T 以下的低场下,比热 C/T 在 T_N 之下的 T_0 处出现了过渡结构,随着 磁场的增加,这一异常明显增强,这与我们电阻率在 T_N 之下的异常是一致的, 因而这一过渡结构跟 1/3 处于无序状态的局域磁矩开始被近藤屏蔽有关。



图 4.8 日本研究小组的极低温比热测量结果^[137] Figure 4.8 The results of specific heat measurement at very low temperature by the Japanese research group^[137]

4.2.4 温度-磁场相图以及量子顺磁相

根据以上我们的测量结果,得到了 CePdAl 在磁场下的相图,如图 4.9 所示。 *B*m 为进入短程序的相过渡点,*T*N 为反铁磁相变点,*T*0 为部分局域磁矩发生近藤 屏蔽时的相过渡点。磁场并不能将这三者连续的调控到 0 K 附近,而是在有限温 度分别在 *B*ab、*B*bc 和 *B*cp 处变为一级变磁性相变。*B**代表近藤破坏发生的位置, 在它的左右两侧费米面的大小发生了变化。相图中的 a、b 和 c 区域对应于变磁 性区域内基态上的不同的磁有序态,f区域为费米液体态。在 CePdAl 的磁场下的相图上,需要注意的是 *B*_{cp}和 *B**之间 p 区域,该区域介于磁有序态(a,b和 c 区域)和费米液体态(f 区域)之间,这在重费米子体系中是很少见的,即磁有序态和费米液体态是分离的,中间存在一个稳定的量子顺磁态。



图 4.9 CePdAl 在磁场中的相图

Figure 4.9 The phase diagram of CePdAl in magnetic field

对于 p 区域内的量子顺磁态,很容易联想到的一种可能性就是自旋玻璃(spin glass)态。因而我们在这一区域选定某一特定磁场进行不同频率交流磁化率的测量,如图 4.10 所示,在 4.4 T 时随温度变化的交流磁化率在不同的频率下没有任何变化,排除了自旋玻璃的可能性。



图 4.10 CePdAl 在 4.4 T 时不同频率的交流磁化率随温度的变化

Figure 4.10 Temperature dependence of AC susceptibility with different frequency for

CePdAl at 4.4 T

4.3 结果讨论

德国研究小组根据比热测量结果给出了 CePdAl 的温度-磁场相图^[136],如图 4.11 所示。跟我们的相图相比,两者之间的争议部分在磁有序之外的区域,也就 是图 4.10 中 *B*_{c3}之后的区域。从我们的电输运和磁性测量结果来看,磁有序之后 的狭窄磁场区域(4.2 T - 4.6 T)内存在着奇异的量子顺磁态,对应于该磁场区域 内的异常鼓包结构。而在比热测量上,极低温(< 0.4 K)4.2 T - 4.6 T 的磁场区 域内没有出现任何异常,因而德国研究小组认为此时直接进入了塞曼效应导致的 自旋极化态区域。同一时期,日本研究小组的比热测量结果与德国研究小组是一 致的^[137],但他们的直流磁化率测量结果却出现了比热上没有的异常,1.3 K 时随 磁场变化的直流磁化率,在第三个变磁性相变 *B*_{m3}之后还存在明显的突起结构, *dM/dB* 在变磁性相变峰之后还存在鼓包结构^[137],他们认为这可能跟几何阻挫有 关,与我们之前的实验结果是一致的。对于我们发现的量子顺磁态,在电输运和 磁性性质上表现出异常行为,而在比热上却没有出现。如何来理解这一奇异量子 态在不同测量手段上表现出的差异性,仍然是一个值得进一步深入研究的问题。



图 4.11 德国研究小组关于 CePdAl 的温度-磁场相图^[136] Figure 4.11 The temperature-magnetic field phase diagram of CePdAl from German research group^[136]

4.4 本章小结

我们利用磁场这一非热力学调控参量,对 CePdAl 的磁性基态进行了调控。 增加磁场的过程中,自旋阻挫的强度也在变化,该变化很大程度上来自于磁场对

未参与磁有序、被近藤屏蔽的 1/3Ce 原子的影响。实验结果显示,随着磁场的增加,近藤屏蔽效应被抑制,几何阻挫强度逐渐增强。随着几何阻挫强度的增加,磁有序区域内的磁结构变得不安定,出现了连续的变磁性相变。当磁有序被完全抑制以后,在基态上形成了既不同于磁有序,也不同于费米液体态的量子顺磁态。 在这一区域内,电输运性质和磁性性质上都出现了明显异常。需要强调的是,到目前为止,对于这一量子顺磁态的实验证据和理解仍然是非常有限。但是,该实验所发现的量子顺磁态存在的可能性为我们进一步开展压力调控研究指明了方向,最终确定了这一奇异量子态的存在。

第5章 压力诱导的量子临界相

5.1 引言

CePdAl 中的自旋为伊辛模型,易磁化轴在 c 轴,因而沿着 c 轴施加磁场会 引入塞曼效应。当塞曼效应很强的时候,将会在很大程度上影响 CePdAl 的量子 临界行为,例如磁场中的电阻行为。当低温区域自旋的量子涨落很强时,在电阻 上会表现出非费米液体行为,而塞曼效应对于自旋的极化将大大减弱自旋的量子 涨落,使得电阻上的非费米液体行为消失。常压下 CePdAl 的长程磁有序消失的 临界磁场为 4.2 T,此时的塞曼效应已经很强。静水压力是实现量子临界的有效 手段,已经在很多 Ce 基反铁磁重费米子金属中得到应用,比如典型材料 CePd₂Si₂ 和 CeIn₃^[32]。相比于磁场,它的优势在于可以避免引入塞曼效应,是一个更可靠 的基态调控手段。与此同时,结合压力和磁场,当磁有序消失的临界磁场足够小 时,此时磁场引入的塞曼效应对量子临界行为的影响可以忽略。

本论文中压力调控的研究重点并不是利用压力来调控 CePdAl 中的反铁磁有 序到 0K 来实现反铁磁量子临界点,Goto 等人^[123]很早就进行了上述工作。我们 的目的是研究该反铁磁量子临界点以及之后的顺磁相是否因为自旋阻挫的存在 而出现奇异物性。在上一章 4.1 小节中已经介绍,CePdAl 中 1/3 的局域磁矩被近 藤效应屏蔽。如果仅仅考虑 2/3 的磁矩的话,其几何阻挫实际上是处于被消除的 状态。在压力下,随着温度的降低,几何阻挫所导致的量子涨落开始对基态的形 成起到越来越重要的作用,因而 CePdAl 在压力调控下形成的基态将出现不同于 Doniach 相图中所刻画的基态。我们在压力和磁场的共同调控下,发现了介于反 铁磁有序和费米液体态之间的量子临界相,这一奇异量子态的形成跟压力调控的 几何阻挫强度有关。

我们通过压力和极低温下的电输运、磁性以及热力学测量,发现当压力将反 铁磁有序完全抑制的同时,系统并没有立即进入费米液体态,而是经过反铁磁量 子相变进入到了跟几何阻挫有关的量子临界相内。继续加压,该量子临界相可以 被抑制,经过一个量子过渡区进入费米液体态。接下来我们将从电输运、磁性和 热力学性质上详细介绍这一过程。

5.2 压力诱导的量子临界相

5.2.1 静水压力下的电输运性质

我们首先给出了不同压力下的电阻率随温度的变化,如图 5.1 (a)所示。电 阻率在 T_m 处出现的宽峰对应于从顺磁态进入短程有序态的相过渡,该短程有序 态是跟几何阻挫抑制长程有序态的产生有关。电阻率对温度的一阶导数 $d\rho/dT$ 上 在 T_N 和 T_0 处出现异常,如图 5.1 (b)所示。 T_N 为进入反铁磁长程序的位置,而 在 T_0 处跟 1/3 处于无序状态的局域磁矩被近藤屏蔽有关。随着压力的增加, CePdAl中的 T_m , T_N 和 T_0 同时被抑制,从图 5.1可以看出, T_0 最先被完全抑制, 在 0.82 GPa时已经完全消失,而 T_m 最后才被完全抑制。随着压力的增加, T_m 处 的宽峰逐渐变为微弱鼓包,这表明在更高的压力下,由顺磁态进入短程有序的过 渡展宽到更大的温度范围,到 1.15 GPa时已经很难在电阻率上确定 T_m 的位置。 在 0.89 GPa时基本可以认为 T_N 已经被抑制到 0 K,而此时 T_m 出现在 1.2 K 附 近,这清楚的反映出 T_m 被抑制到 0 K 的临界压力点明显大于 T_N 被抑制到 0 K 的 临界压力点。我们根据 T_m 和 T_N 随压力线性变化进行估算, T_N 的临界压力点 P_{c1} ≈ 0.9 GPa,而 T_m 的临界压力点 P_{c2} ≈ 1.7 GPa。

我们对两个临界压力点之间的电阻率以幂指数形式进行拟合,得到 *P*=0.93, 1.15 和 1.44 GPa 时,在低温区域电阻率随温度的变化关系分别为*ρ*~*T*^{1.4},*ρ*~*T*^{1.6} 和*ρ*~*T*^{1.7},如图 5.2 所示。在两个临界压力点之间的压力区域内,电阻率的 *n* 值 都小于 2,这是典型的非费米液体行为,在如此宽的压力范围内电阻上出现非费 米液体行为是非常少见的,这与近藤体系中 Doniach 相图所描述的量子临界行为 有着本质上的区别。在 Doniach 相图中,磁有序态被连续抑制到 0 K 时,通过量 子相变进入费米液体态,中间存在一个量子临界点连接磁有序态和费米液体态, 在量子临界点附近会出现类似漏斗形状的非费米液体区域,而 CePdAI 在压力调 控下的情况显然不符合 Doniach 相图所刻画的量子临界行为。首先电阻并不是在 临界压力点附近的狭窄压力范围内出现非费米液体行为,而是在一个将近 0.8 GPa 的压力区间内(0.9-1.7 GPa)同时表现出非费米液体行为,这超出了传统上 非费米液体行为仅仅跟量子临界点有关的认识。



图 5.1 CePdAl 在不同压力下随温度变化的电阻率

(a) CePdAl 在不同压力下随温度变化的电阻率,压力区间为 0-2.12 GPa,其中 T_m为 进入短程序的温度,T_{FL}为费米液体温度。(b) CePdAl 在低于 0.9 GPa 的压力下电阻率对 温度的一阶导数随温度的变化,其中 T_N为反铁磁相变温度,T₀为 1/3 无序的局域磁矩开始 发生近藤屏蔽的温度。

Figure 5.1 Temperature dependence of resistivity for CePdAl at different pressure

(a) Temperature dependence of resistivity at different pressure for CePdAl between 0 GPa and 2.12 GPa, T_m is the temperature entering the short range order, T_{FL} is the Fermi liquid temperature. (b) Temperature dependence of the first derivative of resistivity at different pressure for CePdAl below 0.9 GPa, T_N is the Neel temperature, T_0 is the temperature entering Kondo screening of 1/3 disordered local moment.



图 5.2 两个临界压力点之间不同压力(0.93 GPa,1.15 GPa 和 1.44 GPa)下 电阻率随温度的变化

Figure 5.2 Temperature dependence of resistivity at different pressure (0.93

GPa,1.15 GPa and 1.44 GPa) between two critical pressure



图 5.3 剩余电阻率 ρ₀和电阻率系数 A (非费米液体区域内的电阻系数用 A'表示)随着压力的变化,插图为随压力变化的电阻率指数 n

Figure 5.3 Pressure dependence of the residual resistivity ρ_0 and the coefficient *A* (*A'* is in the non-fermi liquid region), the insert is pressure dependence of the exponent *n*

我们对电阻率用公式 $\rho = \rho_0 + AT^n$ 进行拟合,得到剩余电阻率 ρ_0 和电阻率系数 A,其中非费米液体区域内的电阻系数用 A'表示,如图 5.3 所示。随着压力的变化,剩余电阻率和电阻率系数在第一个临界压力点 $P_{c1} \approx 0.9$ GPa 处出现明显的

尖峰特征,剩余电阻率和电阻率系数在 P_{c1} 左侧均表现出发散行为,同时在 P_{c1} 处电阻率的指数 n<2,表现出非费米液体行为,如图 5.3 中插图所示。以上这些 行为是出现量子相变的典型特征,这清晰的表明 CePdAl 在第一个临界压力点 P_{c1} 处存在反铁磁有序和量子临界相之间的量子相变,而在第二个临界压力点 P_{c2}≈ 1.7 GPa 处,剩余电阻率和电阻率系数上仅仅出现一个微弱的鼓包结构,这表明 在第二个临界压力点 P_{c2} 处并没有发生从量子临界相到费米液体相的量子相变, 而是以量子过渡的形式存在。





图 5.4 CePdAl 在不同压力下随温度变化的交流磁化率

Figure 5.4 Temperature dependence of AC susceptibility at different pressure for CePdAI

不同压力下的交流磁化率随温度的变化更为直观的反映了在 *T*_m 处进入短程 有序态的过渡,如图 5.4 所示。随温度变化的交流磁化率实部 χ'在 *T*_m 之后一直 降低,表明在 *T*_m 之后出现反铁磁关联。随着压力的增加,开始出现反铁磁关联 的温度 *T*_m 连续被抑制,在 1.75 GPa 时被抑制到 0 K 附近,这与在电阻率上估算 得到的临界压力点 *P*_{c2}≈1.7 GPa 是较为吻合的。值得注意的是,在两个临界压力 *P*_{c1} 和 *P*_{c2} 中间的区域内,交流磁化率并没有出现随着温度降低一直上升的非费 米液体行为。在之前的理论和实验上,电阻率上的非费米液体行为与量子临界点 紧密相关,与之对应的,量子临界点附近的磁化率上也出现非费米液体行为。而 我们的实验结果与量子临界点的理论并不符合,我们认为 CePdAl 在 *P*_{c1} 和 *P*_{c2} 之 间的压力区域内的电阻率和交流磁化率的行为,跟该区域内形成的奇异量子态有 关,这种量子态内存在反铁磁自旋关联,同时这种量子态内存在大量简并态,在 不同简并态之间发生的量子涨落使得电阻率上出现非费米液体行为。

5.2.3 化学压力下的热力学性质





由于压力下的比热测量存在诸多困难,因而我们和德国 Gegenwart 教授研究 组合作,进行了化学压力下的比热测量,化学压力是通过掺杂不同比例的 Ni 原 子来替代 CePdAl 中的 Pd 原子来完成的。对应于静水压力下的两个临界压力点 $P_{c1} \approx 0.9$ GPa 和 $P_{c2} \approx 1.7$ GPa, CePd_{1-x}Ni_xAl 在化学压力下 Ni 的两个临界透杂比 例分别为 $x_{c1} = 0.144$ 和 $x_{c2} \approx 0.27^{[122]}$ 。在 $x_{c1} = 0.144$ 以下为反铁磁有序区域,随 着 Ni 掺杂比例的增加,比热上的反铁磁相变峰连续往低温移动,当 x = 0.10 时, 反铁磁相变峰已经不明显,当 x = 0.14 时,反铁磁相变峰已经消失,反铁磁有序 被完全抑制,电子比热 C_{4f}/T 随温度以一h T 形式变化,这是比热上出现非费米 液体行为的典型特征,如图 5.5 所示。而当 x = 0.16 和 0.2 时(位于两个临界压 力点之间),电子比热 C_{4f}/T 仍然表现出明显的非费米液体行为。而在超过第二个 临界掺杂比例 $x_{c2} \approx 0.27$ 时,以 x = 0.40为例,随着温度的降低,电子比热 C_{4f}/T 基本没有发生变化,这是费米液体的典型特征。化学压力下的比热随温度变化的 行为与静水压力下的电阻率随温度的变化是非常一致的,都在两个临界压力点之间的压力区域内出现明显的非费米液体行为。



5.2.4 温度-压力相图以及压力诱导的量子临界相



蓝色 Tm 虚线和黑色 TN 实线分别表示从顺磁态到短程有序态的过渡和反铁磁相变 在压力中的演化, Pc1 和 Pc2 之间为量子临界相。

Figure 5.6 phase diagram of CePdAl under pressure

Blue $T_{\rm m}$ dotted line and black $T_{\rm N}$ solid line represent the evolution of crossover from paramagnetic state to short range ordered state and antiferromagnetic phase transition under pressure respectively, there is a quantum critical phase between $P_{\rm c1}$ and $P_{\rm c2}$.

根据压力下的电阻率和交流磁化率,我们得到了零场压力下 CePdAl 的相 图,如图 5.6 所示。在第二章节已经讨论过,常压下的 Tm 是阻挫导致的短程有 序开始形成的位置,高于反铁磁相变温度 TN,Tm 并不是一个相变点,而是高温 顺磁态过渡到短程反铁磁有序态的过渡点。图 5.6 中的蓝色虚线给出了 Tm 在静 水压力下的演化过程,从相图中 Tm 处的误差范围可以看出,随着压力的增加, Tm 有所展宽,Pc2 附近出现的比较宽的过渡区即对应于 Tm 被抑制到0K 的位置。 图 5.6 中的黑色实线给出了反铁磁相变温度 TN 在压力下的演化过程,可以看到 反铁磁有序被连续的抑制到0K,在 Pc1 处出现反铁磁有序和量子临界相的量子 相变。相图中不同区域颜色标识的变化反映了电阻率指数 n 的变化。通过不同区 域内的颜色标识可以清楚的看到在 P_{c1}处出现了一个类似于漏斗形状的非费米液体区域,而在 P_{c2} 附近非费米液体行为平滑的过渡到费米液体行为。P_{c1} 以下压力 区间内的基态为反铁磁有序态,费米液体态出现在 P_{c2} 以上的压力区间内,在 P_{c1} 和 P_{c2} 之间的压力区间为非费米液体区域,CePdAl 的温度-压力相图上的反铁磁 有序态和费米液体态是完全分离的,中间存在一个非费米液体区域,这一非费米 液体区域终结于 T_m 位置,这表明这一压力区域内的非费米液体行为跟 T_m 以下形 成的阻挫诱导的量子态有关,我们称之为"量子临界相"。

5.3 压力和磁场诱导的量子临界相

5.3.1 压力和磁场下的电输运和磁性性质 (P < Pc1)

零场下的磁有序消失的临界压力 $P_{c1}\approx 0.9$ GPa,图 5.7 给出了低于 0.9 GPa的 压力下 100 mK 随磁场变化的电阻率和交流磁化率。常压下 CePdAl 在低温区域 存在三个变磁性相变以及磁有序区域和费米液体区域中间的量子顺磁态,可以看 出,随着压力的增加,三个变磁性相变开始往低磁场方向移动,在 0.82 GPa 时, 三个变磁性相变消失,此时交流磁化率上出现的峰的特征不再是类似于一级相变 在很窄区域内的尖峰,同时在随磁场的变化的电阻率上不再出现对应于一级变磁 性相变的跳变。这表明在 0.82 GPa 时电阻率和交流磁化率上出现峰的位置对应 于反铁磁有序的临界磁场 B_N ,此时 CePdAl 的反铁磁相变可以被连续的抑制到 0 K 附近,这与在 0.46 GPa 以下的压力区域内出现的一级变磁性相变是完全不同 的。 B^* 为 4f 电子发生退局域化位置,费米面在此处发生了由小费米面到大费米 面的变化。100 mK 时的 B^* 随着压力的增加往低场移动,在变磁性相变的消失的 时候仍然存在,对应于 0.82 GPa 时磁化率出现峰之后的鼓包位置。

 $T_{\rm m}$ 为高温顺磁态进入短程有序态的过渡点,反铁磁相变 $T_{\rm N}$ 出现在 $T_{\rm m}$ 之下, 对应于电阻率对温度的一阶导数 $d\rho/dT$ 上出现的峰,如图 5.8(a)所示。随着磁 场的增加,反铁磁相变被连续的抑制,在 3 T 时已经完全消失。从图 5.8(b)中 可以看出,在 $T_{\rm N}$ 以下的反铁磁有序区域内,电阻率和温度呈现平方的依赖关系, 表现出类似于费米液体的行为,随着磁场的增加,当反铁磁有序被完全抑制时, 电阻率上的费米液体行为消失,在 3 T 和 3.5 T 时电阻率上呈现出明显的非费米 液体行为,在 4 T 以上,电阻率上又开始恢复费米液体行为,表明基态在 4 T 时



图 5.7 $P < P_{c1}$, T = 100 mK 时随磁场变化的电阻率和交流磁化率

(a) CePdAl 在 100 mK 的电阻率在低于 $P_{c1} \approx 0.9$ GPa 时的压力下随磁场的变化。 (b) CePdAl 在 100mK 的交流磁化率在低于 $P_{c1} \approx 0.9$ GPa 时的压力下随磁场的变化。其中 B_{ab} , B_{bc} 和 B_{cp} 为变磁性相变的位置, B^* 为费米面发生变化的位置, B_N 为反铁磁相变的位置。 置。

Figure 5.7 Magnetic field dependence of resistivity and AC susceptibility at 100 mK for CePdAl at $P < P_{c1}$

(a) Magnetic field dependence of resistivity at 100 mK for CePdAl at different pressure below $P_{c1} \approx 0.9$ GPa. (b) Magnetic field dependence of AC susceptibility at 100 mK for CePdAl at different pressure below $P_{c1} \approx 0.9$ GPa. B_{ab} , B_{bc} and B_{cp} represent the positions of the metamagnetic transitions. B^* represents the position of the change of the fermi surface. B_N represents the position of the antiferromagnetic phase transition.



图 5.8 0.82 GPa 时不同磁场下随温度变化的电阻率

(a) CePdAl 在 0.82 GPa 时不同磁场下电阻率 ρ 以及对温度的一阶导数 dρ/dT 随温度的变化,磁场方向沿着 c 轴。(b) CePdAl 在 0.82 GPa 时不同磁场下电阻率随温度的平方的变化,磁场沿着 c 轴。

Figure 5.8 Temperature dependence of resistivity at different magnetic field for CePdAl at 0.82 GPa

(a)Temperature dependence of resistivity *ρ* and the first derivative of resistivity d*ρ*/d*T* at different magnetic field for CePdAl at 0.82 GPa with magnetic field applied in c axis.
(b) Temperature square dependence of resistivity at different magnetic field for CePdAl at 0.82 GPa with magnetic field applied in c axis.

开始进入费米液体态。与电阻率相对应的,0T时的交流磁化率在Tm处出现宽峰结构,并且随着磁场的增加,Tm往低温移动,如图5.9所示。在4T以后的高场区域交流磁化率表现出基本不随温度变化的特征,表明在高场下开始进入费米液体区域。





在 0.82 GPa 时 100 mK 的电阻率可以很好的反映剩余电阻率在磁场中的变 化,如图 5.10 (a)所示。剩余电阻率在临界磁场 BN 处达到最大值,此时反铁磁 有序完全被磁场抑制。对电阻率进行 $\rho \sim AT^2$ 拟合得到的电阻率系数 A,在临界 磁场 BN 之下和临界磁场 B*之上都表现出发散行为,如图 5.10 (b)所示。在临界 磁场 BN 和 B*之间的磁场区域内,对电阻率进行 $\rho \sim T^n$ 拟合得到的指数 n 小于 2, 表明在这一磁场区域内,电阻率上呈现明显的非费米液体行为,如图 5.10 (c) 所示。以上这些行为清晰的表明在临界磁场 BN 和 B*处分别发生了反铁磁有序相 到量子临界相的量子相变以及量子临界相到费米液体相的量子相变,因而在 0.82 GPa 时 CePdAl 在磁场的调控下出现了介于反铁磁有序相和费米液体相之间的量 子临界相,在量子临界相内电阻率上表现出明显的非费米液体行为,表明在该相 内存在很强的量子涨落,同时交流磁化率在该相内表现为随着温度的降低而下降, 表明在这一相内存在着反铁磁的自旋关联。



图 5.10 P=0.82 GPa 时磁场下的剩余电阻率、电阻率系数和电阻率指数

(a) P=0.82 GPa, T=100 mK 时的电阻率ρ 随磁场的变化。(b) 在低温区域对电阻率进行 ρ~AT² 拟合得到的电阻率系数 A 随磁场的变化。(c) P=0.82 GPa 时 CePdAl 在磁场下相图,色标反映了电阻率指数 n 的变化,Tm是从交流磁化率和电阻率上的异常得到的,TN是从电阻率对温度的一阶导数上得到的。

Figure 5.10 The residual resistivity, resistivity coefficient and resistivity exponent in magnetic field at P = 0.82 GPa

(a)Magnetic field dependence of resistivity ρ at P = 0.82 GPa, T = 100 mK. (b) Magnetic field dependence of resistivity coefficient A obtained by $\rho \sim AT^2$ fitting in the low temperature. (c)The phase diagram of CePdAl under magnetic field at P = 0.82 GPa.the colour code indicates the exponent n in $\rho \sim T^n$. T_m and T_N obtained in resistivity and AC susceptibility data.



5.3.2 压力和磁场下的电输运和磁性性质 (Pc1 < P < Pc2)

图 5.11 Pc1 < P < Pc2 时 100 mK 随磁场变化的电阻率和交流磁化率

(a) CePdAl 在 100 mK 的电阻率在 $P_{c1} < P \le P_{c2}$ 时的压力下随磁场的变化。(b) CePdAl 在 100mK 的交流磁化率在 $P_{c1} < P \le P_{c2}$ 时的压力下随磁场的变化。 B^* 为费米面发 生变化的位置。

Figure 5.11 Magnetic field dependence of resistivity and AC susceptibility at 100 mK for CePdAl at $P_{c1} < P < P_{c2}$

(a) Magnetic field dependence of resistivity at 100 mK for CePdAl at $P_{c1} < P < P_{c2}$.

(b) Magnetic field dependence of AC susceptibility at 100 mK for CePdAl at $P_{c1} < P < P_{c2}$.

 B^* represents the position of the change of the fermi surface.

当 $P_{c1} < P < P_{c2}$ 时,此时零场下处于压力诱导的量子临界相内,在磁场的调控下,该量子临界相在 B^* 处被完全抑制,然后进入费米液体态。图 5.11 给出了

T=100 mK 时随磁场变化的电阻率和交流磁化率,可以看出,随着压力的增加,
 B*逐渐往低场移动,最终在 P_{c2} 处消失,之后进入费米液体态。



图 5.12 0.93 GPa 时不同磁场下随温度变化的电阻率

(a) CePdAl 在 0.93 GPa 时不同磁场下电阻率 ρ 随温度的变化,磁场方向沿着 c
 轴。(b) CePdAl 在 0.93 GPa 时不同磁场下电阻率随温度的平方的变化,磁场沿着 c 轴。
 Figure 5.12 Temperature dependence of resistivity at different magnetic field for CePdAl at 0.93 GPa

(a)Temperature dependence of resistivity ρ at different magnetic field for CePdAl at 0.93 GPa with magnetic field applied in c axis. (b) Temperature square dependence of resistivity at different magnetic field for CePdAl at 0.93 GPa with magnetic field applied in c axis.

当 P=0.93 GPa 时,电阻率在 0 T 到 2 T 时表现出非费米液体行为,在 2.5 T 以上费米液体行为开始恢复,如图 5.12 所示。在电阻率出现非费米液体行为的 磁场区域内,交流磁化率并没有表现出随着温度降低而升高的非费米液体行为, 而是在 T_m之下开始下降,且随着磁场的增加,T_m往低温移动,如图 5.13 所示。 这表明 T_m之下的量子临界态随着磁场的增加被连续抑制,在 2 T 左右被抑制到 0 K 附近,然后量子相变进入费米液体态。





T = 100 mK 时随磁场变化的电阻率可以反映剩余电阻率在磁场中的变化, 我们对随磁场变化的电阻率对磁场求一阶导数,可以看到 dp/dB 在 2T 附近出现 一个峰,对应于量子临界相被完全抑制的临界磁场 *B**,如图 5.14 (a)所示。大 于 2T 的磁场中,CePdAl 开始进入费米液体态,对该区域内的电阻进行 *p~AT*² 的 拟合得到的电阻率系数 *A*,在费米液体区域内表现出发散行为,如图 5.14 (b) 所示。图 5.14 (c)给出了 *P*=0.93 GPa 时 CePdAl 在磁场中的相图,可以看到在 0 T 到 2 T 的磁场区域内,存在一个稳定的量子临界相,这表明在这一磁场区域 内电阻率表现出来的非费米液体行为并非是由量子临界点导致的,而是量子临界 相这一奇异量子态自身的特征,在临界磁场 *B**处存在量子临界相与费米液体态 之间的量子临界点。



图 5.14 P=0.93 GPa 时磁场下的剩余电阻率、电阻率系数和电阻率指数

(a) *p* = 0.93 GPa, *T* = 100 mK 时的电阻率 *ρ* 和电阻率随磁场的一阶导数 d*ρ*/dB 随磁场的变化。
(b) 在低温区域对电阻率进行 *ρ*~*AT*² 拟合得到的电阻率系数 *A* 随磁场的变化。
(c) *p* = 0.93 GPa 时 CePdAl 在磁场下相图,色标反映了电阻指数 *n* 的变化,*T*_m表示开始进入短程有序态的过渡温度,*T*_{FL}表示费米液体温度。

Figure 5.14 The residual resistivity, resistivity coefficient and resistivity exponent in

magnetic field at P = 0.93 GPa

(a) Magnetic field dependence of resistivity ρ and $d\rho/dB$ at p = 0.93 GPa,T = 100 mK. (b) Magnetic field dependence of resistivity coefficient A obtained by $\rho \sim AT^2$ fitting in the low temperature. (c)The phase diagram of CePdAl under magnetic field at p = 0.93 GPa.the colour code indicates the exponent n in $\rho \sim T^n$. T_m represents crossover temperature to the short range order. T_{FL} represents the fermi liquid temperature.



图 5.15 1.15 GPa 时不同磁场下随温度变化的电阻率

(a) CePdAl 在 1.15 GPa 时不同磁场下电阻率ρ 随温度的变化,磁场方向沿着 c 轴。
 (b) CePdAl 在 1.15 GPa 时不同磁场下电阻率随温度的平方的变化,磁场沿着 c 轴。
 Figure 5.15 Temperature dependence of resistivity at different magnetic field for CePdAl at 1.15 GPa

(a)Temperature dependence of resistivity ρ at different magnetic field for CePdAl at 1.15 GPa with magnetic field applied in c axis. (b) Temperature square dependence of resistivity at different magnetic field for CePdAl at 1.15 GPa with magnetic field applied in c axis.

图 5.15 给出了 *P*=1.15 GPa 时电阻率随温度的变化,电阻率在低场时偏离温度平方的依赖关系,呈现非费米液体行为,随着磁场的增加,电阻率随温度的变化与温度的平方成线性依赖关系,这是典型的费米液体行为,表明 CePdAl 在高场进入费米液体态。而在电阻率出现非费米液体行为的磁场区域内,交流磁化率在 *T*m 处出现一个宽峰,在 *T*m 之下,随着温度的降低而减小,并未出现随着温度

的降低而增加的非费米液体行为,如图 5.16 所示。这与 p = 0.93 GPa 的情况是类 似的,但也有不同之处。不同的地方在于非费米液体区域内电阻率的指数 n 更接 近 2,同时 0 T 处 T_m 出现在更低的温度,并且交流磁化率在 T_m 处出现的宽峰变 的更不明显,在 T_m 之下,随着温度的降低变化非常小,如图 5.16 所示。这表明 相比于 P = 0.93 GPa 时,此时 CePdAl 中的局域磁矩变的更小了,这与随着压力 的增加近藤屏蔽效应增强有关。与之对应的,在 80 mK 时随磁场变化的电阻率 在低场区域内变化非常不明显,仅仅出现了微弱的降低,如图 5.17 (a)所示,而在 P = 0.93 GPa 时电阻率随着磁场变化非常显着。我们对费米液体区域的电阻 率进行 $\rho \sim AT^2$ 拟合,得到电阻率的系数 A 随着磁场的变化,可以看到相比于 0.93 GPa 时,在费米液体区域内,电阻率系数 A 在费米液体边界处并没有出现明显的 发散行为,如图 5.17 (b)所示,这表明量子临界相进入费米液体态的方式由 0.93 GPa 时的量子相变变为了量子过渡。图 5.17 (c)给出了 1.15 GPa 时 CePdA 的温 度-磁场相图,在 T_m 之下存在一个稳定的量子临界相,相比于 0.93 GPa 时,量子 临界相所在的磁场区域进一步缩小。



图 5.16 CePdAl 在 1.15 GPa 时不同磁场下交流磁化率实部随温度的变化

Figure 5.16 Temperature dependence of the real part of AC susceptibility at different magnetic field for CePdAl at 1.15 GPa



图 5.17 P=1.15 GPa 时磁场下的剩余电阻率、电阻率系数和电阻率指数

(a) p = 1.15 GPa, T = 80 mK 时的电阻率 ρ 随磁场的变化。(b) 在低温区域对电阻率 进行 $\rho \sim AT^2$ 拟合得到的电阻率系数 A 随磁场的变化。(c) p = 1.15 GPa 时 CePdAl 在磁场下 相图, 色标反映了电阻指数 n 的变化, T_m 表示开始进入短程有序态的过渡温度, T_{FL} 表示 费米液体温度。

Figure 5.17 The residual resistivity, resistivity coefficient and resistivity exponent in magnetic field at P = 1.15 GPa

(a) Magnetic field dependence of resistivity ρ at p = 1.15 GPa, T = 80 mK. (b) Magnetic field dependence of resistivity coefficient A obtained by $\rho \sim AT^2$ fitting in the low temperature. (c)The phase diagram of CePdAl under magnetic field at p = 1.15 GPa.the colour code indicates the exponent n in $\rho \sim T^n$. T_m represents crossover temperature to the short range order. T_{FL} represents the fermi liquid temperature.



图 5.18 1.44 GPa 时不同磁场下随温度变化的电阻率

(a) CePdAl 在 1.44 GPa 时不同磁场下电阻率 ρ 随温度的变化,磁场方向沿着 c
 轴。(b) CePdAl 在 1.44 GPa 时不同磁场下电阻率随温度的平方的变化,磁场沿着 c 轴。
 Figure 5.18 Temperature dependence of resistivity at different magnetic field for CePdAl at 1.44 GPa

(a)Temperature dependence of resistivity ρ at different magnetic field for CePdAl at 1.44 GPa with magnetic field applied in c axis. (b) Temperature square dependence of resistivity at different magnetic field for CePdAl at 1.44 GPa with magnetic field applied in c axis.

当P=1.44 GPa 时,电阻率在1T 时低温区域已经满足温度平方的线性依赖 关系,这表明在1T 时已经进入费米液体态,随着磁场的增加,费米液体区域逐 渐增加。而在0T 时,对电阻率在250 mK 以下的温度区间内进行 $\rho \sim T^n$ 拟合,得 到n=1.6,呈现出非费米液体行为,如图5.18 所示。与之对应的,在0T 时,交 流磁化率在 $T_m=0.52$ K 之下随着温度的降低而微弱下降,而在0.5 T 时, T_m 已经 消失,交流磁化率一直到最低温表现出非常微弱的上升行为,在1T时低温区域 交流磁化率表现出不随温度变化的行为,这是进入费米液体态的特征,如图 5.19 所示。0T时电阻率的非费米液体行为的出现以及交流磁化率上出现的 *T*m,表明 在 *P* = 1.44 GPa 时量子临界相仍然存在于很低的磁场区域内,其临界磁场小于 0.5 T。图 5.20 (a) 给出了 80 mK 随磁场变化的电阻率,可以看出在小于1T的 低场区域内,电阻率几乎不随磁场变化,这一异常行为间接反映出量子临界相的 存在,同时也表明此时量子临界相内的局域磁矩已经非常微弱了,对电阻率的散 射贡献已经非常小了。在费米液体区域内,对电阻率进行行 *p~AT*² 拟合,得到电 阻率的系数 *A*,可以看出随着磁场的增加,电阻率的系数 *A* 近似线性的减小,没 有表现出发散行为,如图 5.20 (b) 所示。这表明在该压力下,量子临界相和费 米液体态之间不再像 *P*=0.93 GPa 时以一个量子临界点来连接,而是以量子过渡 的形式存在。图 5.20 (c) 给出了 CePdAI 在 *P*=1.44 GPa 时的相图,黑色虚线以 下的红色区域为费米液体区域,而在费米液体区域之外的低场区域为量子临界相 区域,此时量子临界相区域已经很小了。



图 5.19 CePdAl 在 1.44 GPa 时不同磁场下交流磁化率实部随温度的变化

Figure 5.19 Temperature dependence of the real part of AC susceptibility at different magnetic field for CePdAl at 1.44 GPa



图 5.20 P=1.44 GPa 时磁场下的剩余电阻率、电阻率系数和电阻率指数

(a) p = 1.44 GPa, T = 80 mK 时的电阻率 ρ 随磁场的变化。(b) 在低温区域对电阻率 进行 $\rho \sim AT^2$ 拟合得到的电阻率系数 A 随磁场的变化。(c) p = 1.15 GPa 时 CePdAl 在磁场下 相图, 色标反映了电阻指数 n 的变化, $T_{\rm FL}$ 表示费米液体温度。

Figure 5.20 The residual resistivity, resistivity coefficient and resistivity exponent in

magnetic field at P = 1.44 GPa

(a) Magnetic field dependence of resistivity ρ at p = 1.44 GPa, T = 80 mK. (b) Magnetic field dependence of resistivity coefficient A obtained by $\rho \sim AT^2$ fitting in the low temperature. (c) The phase diagram of CePdAl under magnetic field at p = 1.44 GPa. The color code indicates the exponent n in $\rho \sim T^n$. $T_{\rm FL}$ represents the fermi liquid temperature.







当 *P* = 0.82 GPa,常压下低温区域出现的变磁性相变已经被压力完全抑制,此时的压力仍小于 *P*_{c1},因而零场时的基态处于反铁磁有序态。进一步结合磁场 来进行量子调控,可以将反铁磁有序态连续抑制到 0 K,在这一过程中,该体系中的 RKKY 相互作用被抑制,而几何阻挫效应逐渐增强,最终进入到由几何阻 挫起主导作用的基态上,即图 5.21 中 0.82 GPa 时温度-磁场相图中 *B*_N和 *B**之间 的区域,该磁场区域内的电阻率出现非费米液体行为,我们将其称之为量子临界相。在 *P*_{c1} < *P* < *P*_{c2} 的压力区间内,零场时反铁磁有序态已经被完全抑制,此时 处于量子临界相内,在图 5.21 中 0.93 GPa 时的温度-磁场相图中可以看到,量子 临界相可以被磁场连续的抑制到 0 K,然后量子相变进入费米液体态,因而在 *P* = 0.93 GPa 时,存在一个量子临界相与费米液体态之间的量子临界点,具体参见 5.32 小节。而随着压力的进一步增加,量子临界相被抑制,同时磁场中量子临界

相到费米液体态的过程逐渐由量子相变过渡到量子过渡。在 1.44 GPa 时,从高 温顺磁性进入量子临界相的过渡区域有了明显展宽,因而很难确定 T_m的位置, 基态上在磁场的调控下量子临界相通过量子过渡进入费米液体态。

5.4 结果讨论





Figure 5.22 The pressure-magnetic field phase diagram for the ground state of CePdAl

对于 CePdAl 在压力下的研究, Goto 等人在之前已经做了在静水压力下的比 热实验^[123],他们发现在 P_c = 0.95 GPa 时出现了反铁磁的量子临界点,在该量子 点处存在 2D 的量子涨落。另外 Isikawa 等人^[121]以及 Fritsch 等人^[122]先后对 CePd₁. _xNi_xAl 多晶样品进行了比热测量,发现在 x= 0.144 时反铁磁有序消失,比热上出 现非费米液体行为,跟量子临界点处的 2D 的量子涨落有关。因而之前的静水压 力实验和化学压力实验的结果是一致的,他们得到的 CePdAl 的温度–压力相图 并没有关注顺磁相区域。除了反铁磁量子临界点以外,在本研究中,我们尤其关 注更高压力下的顺磁态区域。我们的研究发现 CePdAl 在压力以及压力和磁场共 同调控下的基态变化并不符合 Doniach 相图。如图 5.22 所示,CePdAl 的基态上 在有限的压力和磁场区域内,出现了介于反铁磁有序态和费米液体态之间的量子 临界相,对应于图 5.22 中 B_N 和 B^* 之间的区域。在该量子临界相内,电阻率和比 热上出现显著的非费米液体行为,交流磁化率上显示出在该量子态内存在反铁磁 的自旋关联。

在有限的调控参量区间内电阻率上出现非费米液体行为的情况,在之前 Ge

掺杂和 Ir 掺杂的 YbRh₂Si₂^[138,139], YbAgGe^[140-142]以及 β-YbAlB₄^[143,144]体系中曾 经被报道。但是, CePdAl 体系中的量子临界相与上述体系中的情况又存在区别。 掺杂的 YbRh₂Si₂ 体系中的非费米液体相出现在非常小的磁场区域内,仅仅只有 0.3 T 左右,同时并不能排除掺杂引入的无序对电阻率行为的影响。而 CePdAl 的 量子临界相存在的区域要大的多,压力区间大约为 0.8 GPa,磁场区间大约为 2 T,因而相比于 YbRh₂Si₂ 体系而言,CePdAl 中的量子临界相更像是一个在阻挫 和近藤效应共同作用下的稳定量子态。同时,本研究的对象是严格化学计量比的 CePdAl 单晶样品,结合静水压力实验,排除了无序对实验结果的影响。另外, 和 YbAgGe 相比,压力下 CePdAl 中反铁磁有序和量子临界相之间为二级的量子 相变,而 YbAgGe 中非费米液体态和磁有序之间为一级相变^[140-142]。β-YbAlB4 中 非费米液体区域在压力的调控下,首先进入费米液体态,在更高的压力下出现反 铁磁有序态^[143],这与 CePdAl 中量子临界相介于反铁磁有序和费米液体态之间 的情况是不同的。最后值得强调的是,通过构建 CePdAl 的详细低温相图,我们 不仅指出了该量子临界相存在的证据,还明确了它和自旋阻挫的密切关系,这一 点对于后续理论研究阻挫重费米子体系尤其重要。

5.5 本章小节

由于几何阻挫的存在,在常压和零磁场下 CePdAl 是一个部分反铁磁有序的 重费米子金属。我们在极低温下对该材料进行了压力和磁场的共同调控,并测量 了电阻、磁化率和比热等物性。我们发现该材料的基态可以从部分反铁磁有序态, 通过二级反铁磁量子相变进入到几何阻挫效应起主导作用的量子临界相。该临界 相不仅具有非费米液体特征,由于局域磁矩的存在,还是潜在的金属性的自旋液 体相。进一步增加压力或磁场,量子临界相被抑制,同时发生费米面由小到大(f 电子的退局域化)的量子相变或过渡,进入重费米子液体相。也就是说,在部分 反铁磁有序相和费米液体相之间的很大的相空间内,CePdAl 中存在一个稳定的 量子临界相。

图 5.23 给出了重费米子体系无阻挫和有阻挫两种情形下的量子临界行为的 示意图^[145],可以看出当阻挫存在时,量子临界点展宽成了量子临界相,这一过 程很可能和阻挫和近藤效应的竞争有关。在量子临界相内,电阻率和比热上表现 为非费米液体行为,表明该量子态内存在很强的量子涨落。而另一方面,我们也



图 5.23 重费米子体系中无阻挫 (a) 和有阻挫时 (b) 的量子临界示意相图^[145] Figure 5.23 schematic phase diagrams of quantum criticality in heavy fermion system without frustration(a) and with frustration(b)^[145]

观察到在该相内交流磁化率随温度降低而下降,表明在该量子态内仍然存在反铁磁的自旋关联。这一定程度上符合理论上对于量子自旋液体的描述^[5,58],即具有反铁磁关联的基态上存在大量简并态,这些简并态之间发生量子涨落从而形成量子自旋液体。因而,我们在 CePdAl 中发现的量子临界相可能是一种金属性的量子自旋液体,值得继续深入的理论和实验研究。另外,在金属体系中该量子临界相得以稳定存在的物理机制也值得进一步研究。

第6章 CePdAl中的量子临界软化行为

6.1 引言

常压下, CePdAl 在磁场的调控下, 在低于 0.4 K 的温度区域, 电阻、霍尔电 阻和磁化率在三个变磁性相变之后会出现一个鼓包结构, 而比热在对应磁场区间 内却没有明显异常。Lucas 等人^[136]根据 CePdAl 在磁场下的比热测量结果, 认为 在磁场的调控下, 第一个变磁性相变和第二个变磁性相变之间的磁有序区域内几 何阻挫最强, 因而最有可能出现被称为金属性自旋液体的奇异态。我们根据电输 运和磁性的测量结果, 主张介于磁有序和费米液体态之间的量子顺磁态更可能是 金属性的自旋液体。

针对 CePdAl 中的二维几何阻挫结构特点来发展新的测量技术,进而表征几 何阻挫对物性的影响,是解决以上争议的最为直接的手段。在磁性阻挫体系中, 几何阻挫使得磁结构处于不安定的状态,此时可以通过晶格畸变来释放弹性能的 方式来降低体系的能量,最终形成稳定的磁结构。在这一过程之中,磁弹性耦合 很强,因而可以通过晶格的弹性变化来反映几何阻挫强度,而超声测量是反映晶 格弹性的有效手段。沿着这一思路,我们对 CePdAl 进行了超声测量,得到了极 低温下磁性相变区域内晶格在不同轴向上的弹性变化。

我们发现在第三个变磁性相变附近,晶格在弹性上最为软化。同时,沿着 c 轴和垂直于 c 轴方向的晶格弹性表现出明显的各向异性,在几何阻挫存在的 ab 面上弹性的变化更为明显,这表明几何阻挫引起的不安定的磁结构在很大程度上 影响了晶格的弹性。接下来我们将介绍不同轴向上的纵波模式的超声测量实验结 果,来分析量子临界区域不同轴向上表现出的弹性各向异性与几何阻挫的关系。 最后我们对几何阻挫存在的 ab 面进行横波模式的超声测量,进一步验证以上结 果。

6.2 几何阻挫诱导的弹性各向异性

我们首先利用纵波进行不同轴向的超声波测量。沿着 a 轴传播的纵波模式对应于弹性常数 C11,沿着 c 轴传播的纵波模式对应于弹性常数 C33。CePdAl 的六

方结构决定了沿着 b 轴传播的纵波模式的弹性常数 C₂₂ 和沿着 a 轴传播的纵波模式的弹性常数 C₁₁ 是完全等价的,因而我们只需要测量弹性常数 C₁₁ 和 C₃₃ 即可得到不同轴向上的纵波弹性变化。我们分别测量了以上两种弹性常数在 0T 时随温度的变化以及 2K 和 100 mK 时随磁场的变化,接下来将对实验结果进行逐一介绍。



6.2.1 B=0T 时弹性常数的温度变化

图 6.1 0T 时不同轴向的晶格弹性随温度的变化

(a) CePdAl 在 0 T 时弹性常数 C_{11} 的变化量 $\Delta C/C$ 随温度的变化。(b) 红色曲线表 示 CePdAl 在 0 T 时弹性常数 C_{33} 的变化量 $\Delta C/C$ 随温度的变化,黑色曲线为弹性常数 C_{33} 的变化量 $\Delta C/C$ 对温度的一阶导数 $d(\Delta C/C)/dT$ 。 T_N 和 T_m 的位置以不同的虚线来表示。

Figure 6.1 (a) Temperature dependence of lattice elasticity in different axes at 0 T

(a)Temperature dependence of the variation $\Delta C/C$ with elastic constant C_{11} for CePdAl at 0 T. (b) Temperature dependence of the variation $\Delta C/C$ with elastic constant C_{33} for CePdAl at 0 T, shown in red curve. The black curve is the first derivative of elastic constant C_{33} . The positions of T_N and T_m are represented by different dashed lines.

图 6.1 给出了 0 T 时两种模式的弹性常数 C11, C33 的变化量 ΔC/C 随温度的

变化,在弹性常数 C₁₁上可以明显的看到 T_N和 T_m的位置。在 T_m之上的温度区 间内,随温度的下降一直呈现出弹性软化。在 T_N之下的温度区间内,在弹性常 数 C₁₁随温度的降低而上升,表现出明显的弹性硬化。而在 T_N和 T_m之间的温度 区域为弹性最软的区域,这一区域对应于几何阻挫诱导的短程有序区域,这与我 们开始时的预期是一致的,即几何阻挫最强的时候,强烈的自旋涨落将使得晶格 结构处于不稳定状态,因而在弹性上表现出软化。弹性常数 C₃₃在 T_m处出现极 小值,而 T_N对应于弹性常数 C₃₃对温度的一阶导数上出现峰的位置,如图 6.1(b) 所示,两种弹性常数模式都可以观察到 T_N和 T_m。

6.2.2 T=2K时弹性常数的磁场变化



图 6.2 2 K 时不同轴向晶格弹性随磁场的变化

CePdAl 在 2 K 时弹性常数 C_{11} (a) 和 C_{33} (b) 的变化量 $\Delta C/C$ 以及对磁场的一阶导数 $d(\Delta C/C)/dB$ 随磁场的变化。 B_N 和 B_m 的位置以不同的虚线来表示。

Figure 6.2 Magnetic field dependence of lattice elasticity in different axes at 2 K

Field dependence of the variation $\Delta C/C$ and the first derivative of $\Delta C/C$ with elastic constant $C_{11}(a)$ and $C_{33}(b)$ for CePdAl at 2 K. The positions of B_N and B_m are represented by different dashed lines.

图 6.2 给出了 2 K 时两种模式的弹性常数 C₁₁, C₃₃ 的变化量 ΔC/C 随磁场的 变化,可以看出,弹性常数对磁场的一阶导数上出现的峰对应于反铁磁有序的临 界磁场,以 B_N 来表示,而弹性常数随磁场变化上出现极小值的位置对应于短程 有序的临界磁场,以 B_m 来表示。两种模式的弹性常数 C₁₁, C₃₃ 出现 B_N 和 B_m 的 位置是完全一致的,这表明反铁磁相变以及之上的与几何阻挫有关的过渡区域对 于晶格的 a 轴方向和 c 轴方向都有影响,并没有表现出各向异性。



6.2.3 晶格弹性的各向异性

图 6.3 100 mK 时不同轴向晶格弹性随磁场的变化

(a) CePdAl 在 100 mK 时弹性常数 C_{11} 的变化量 $\Delta C/C$ 随磁场的变化。(b) CePdAl 在 100 mK 时弹性常数 C_{33} 的变化量 $\Delta C/C$ 随磁场的变化。 B_{ab} , B_{bc} 和 B_{cp} 的位置以不同颜 色的虚线来表示。

Figure 6.3 Magnetic field dependence of lattice elasticity in different axes at 100 mK

(a) Field dependence of the variation $\Delta C/C$ with elastic constant C_{11} for CePdAl at 100 mK, shown in blue curve. (b) Field dependence of the variation $\Delta C/C$ with elastic constant C_{33} for CePdAl at 100 mK, shown in red curve. The positions of B_{ab} , B_{bc} and B_{cp} are represented by different dashed lines.
图 6.3 给出了在 T = 100 mK 时,两种模式的弹性常数 C_{11} 和 C_{33} 的变化量 $\Delta C/C$ 随磁场的变化,不同颜色的虚线表示在该磁场位置出现的变磁性相变。可 以看出,前两个变磁性相变在两种模式的弹性常数 C_{11} 和 C_{33} 上表现出突然下降 的行为,表明晶格在该变磁性相变位置在 a 轴和 c 轴方向上都出现了弹性软化行 为。非常异常的是,在第三个变磁性相变 B_{cp} 位置,在弹性常数 C_{11} 上出现了非 常明显的峰的结构,而在弹性常数 C_{33} 上在第三个变磁性相变 B_{cp} 附近没有出现 任何明显的峰的结构,仅仅发生了从随着磁场增加而减小的行为转变为随着磁场 增加而增加的行为,而这一转变是对应于磁有序区域和费米液体区域的转变,跟 第三个变磁性相变无关。因而两种模式的弹性常数在第三个变磁性相变 B_{cp} 位置 出现了明显的各向异性,这表明在量子顺磁相附近晶格在 a 轴上发生了明显的弹 性畸变,而在 c 轴方向上几乎没有发生变化。晶格在不同轴向上的晶格弹性各向 异性的出现,反映出自旋关联在不同轴向的各向异性。也就是说,CePdAI 在几 何阻挫存在的 ab 面内存在很强的自旋关联,而在沿着 c 轴方向的几何阻挫面间 的自旋关联很弱。

图 6.4 给出了 CePdA1 中两个的弹性常数 C₁₁和 C₃₃在不同温度下随磁场的变化。对比两个弹性常数 C₁₁和 C₃₃可以看出,在弹性常数 C₁₁在 B_{cp}处出现的明显的跳变行为,而在弹性常数 C₃₃上在低温区域并没有出现类似于弹性常数 C₁₁上的跳变行为。这表明在 B_{cp}处的第三个变磁性相变仅仅在弹性常数 C₁₁上能够表现出来,第三个变磁性相变表现出来的明显的各向异性与几何阻挫的各向异性高度重合。因为几何阻挫结构发生在 ab 平面内,所以,仅仅在 ab 平面内观测到的由 C₁₁所反映的晶格畸变可能是由几何阻挫导致,这一点区别于前两个变磁性相变,后者在所有弹性模式都可以被观测到。

图 6.5 给出了两种弹性常数在磁场中的软化相图。可以看出,前两个变磁性 相变在两种弹性常数上的表现是一致的,都表现出了晶格上的异常软化,而第三 个变磁性相变在不同轴向上出现出了明显的各向异性,这与晶格内几何阻挫的结 构特点是一致的,这表明在量子顺磁相附近,仅仅在几何阻挫面内出现了异常的 晶格弹性软化。

91



图 6.4 不同温度下不同轴向上晶格弹性随磁场的变化

(a) CePdAl 在不同温度下弹性常数 C₁₁的变化量 ΔC/C 随磁场的变化,温度区间为
 100 mK 到 2 K。(b) CePdAl 在不同温度下弹性常数 C₃₃的变化量 ΔC/C 随磁场的变化,温
 度区间为 100 mK 到 2 K。B_{ab}, B_{bc} 和 B_{cp} 为变磁性相变位置。

Figure 6.4 Magnetic field dependence of lattice elasticity in different axes at different temperature

(a) Field dependence of the variation $\Delta C/C$ with elastic constant C_{11} for CePdAl at different temperature between 100 mK and 2 K. (b) Field dependence of the variation $\Delta C/C$ with elastic constant C_{33} for CePdAl at different temperature between 100 mK and 2 K. B_{ab} , B_{bc} and B_{cp} represent the positions of metamagnetic transitions.





(a) CePdAl 的弹性常数 C₁₁ 在磁场中的相图。(b) CePdAl 的弹性常数 C₃₃ 在磁场中的相图。相图中的色标反映了弹性常数相对于 C (0 T, 80 mK) 时的变化量。

Figure 6.5 Phase diagrams obtained from lattice elasticity of different axes

(a) The phase diagram of elastic constant C_{11} for CePdAl in magnetic field. (b) The phase diagram of elastic constant C_{33} for CePdAl in magnetic field. The color code represents the variation of elastic constant compared with C (0 T, 80 mK).

6.3 晶格软化在横波模式上的表现

我们通过横波模式的超声测量对以上结果进行了以下验证: 在 ab 面内的横 波模式上也可以观察到在几何阻挫效应导致的晶格在 ab 面内的畸变。我们选择 了传播方向为 a 轴,振动方向垂直于 a 轴的 ab 面内横波模式,弹性常数 *C*₆₆ 在 低温区域第三个变磁性相变表现出了明显的跳变,表明晶格在这一临界磁场 *B*_{cp} 位置出现了明显的晶格畸变,如图 6.6 所示。这与我们得到纵波模式的超声测量

结果是相一致的。



图 6.6 不同温度下随磁场变化的晶格弹性和由此得到的相图

(a) CePdAl 在不同温度下弹性常数 C₆₆ 的变化量 ΔC/C 随磁场的变化,温度区间为
 100 mK 到 2.5 K。(b) CePdAl 的弹性常数 C₆₆ 在磁场中的相图。相图中的色标反映了弹性
 常数 C₆₆ 相对于 C(0 T, 80 mK)时的变化量。

Figure 6.6 Magnetic field dependence of the lattice elasticity at different temperatures and the phase diagram obtained from it

(a) Field dependence of the variation $\Delta C/C$ with elastic constant C_{66} for CePdAl at different temperature between 100 mK and 2.5 K. (b) The phase diagram of elastic constant C_{66} for CePdAl in magnetic field. The color code represents the variation of elastic constant C_{66} compared with C (0 T, 80 mK).

6.4 本章小节

结合稀释制冷机和超导磁体,我们将超声测量技术成功应用于极限环境下近

藤金属体系中几何阻挫效应的研究。通过测量 CePdAl 在不同轴向的晶格弹性变化,可以直接反映体系中几何阻挫效应的影响,这是常规测量手段很难实现的。 实验发现,随着温度降低,在阻挫引起的短程有序区域内(*T*N < *T* < *T*m),体系是 最软的,一旦进入长程磁有序,弹性硬度迅速上升。另一方面,弹性常数随磁场 的变化显示,仅仅当声波的振动方向在几何阻挫所在的 ab 面的时候,我们可以 观测到对应于量子顺磁相的异常软化,其磁场范围基本对应于量子顺磁相的出现 范围。因此,我们可以推测,几何阻挫效应在体系经历变磁相变,进入量子顺磁 相后内是最强的,这个时候,该材料的晶格弹性也是最软的,相关的超声波测量 仍在进行中。

第7章 总结与展望

本论文研究的几何阻挫近藤金属体系属于重费米子材料和磁性阻挫材料两 大研究领域的交叉领域。在重费米子体系中,量子临界行为一直是其核心问题, 与奇异金属态以及非常规超导有着重要联系。而磁性阻挫体系一般为莫特绝缘体, 其核心问题在于寻找自旋阻挫导致的奇异量子态,比如量子自旋液体。对于以上 两类问题,几何阻挫近藤金属体系提供了全新的研究思路:通过几何阻挫影响量 子临界效应,探索金属体系中的新型量子临界点和量子自旋液体的可能性。本论 文以典型的几何阻挫近藤晶格体系 CePdAl 为研究对象,利用磁场和压力这些非 热力学调控手段,系统地研究了几何阻挫对近藤金属体系中量子临界行为的影响, 发现了一系列非常规的量子临界行为以及奇异量子态。本论文中得出的重要实验 结果主要包含以下两个部分:

一:我们通过磁场和压力等非热力学调控手段对 CePdAl 中几何阻挫效应和 量子临界行为进行了研究。实验结果显示,该材料中的部分磁有序相可以被磁场 或压力抑制。当磁有序被完全抑制以后,体系并没有出现费米液体行为,而是在 很宽的磁场压力相空间内产生了新的量子态-"量子临界相"。这一稳定存在的"量 子临界相"既不是磁有序态,也不是费米液体态,它的存在很可能和阻挫和近藤 效应的竞争有关,超出了描述传统重费米子体系量子临界行为的基本框架,即 Doniach 相图。也就是说,当重费米子体系中几何阻挫效应很强时,磁有序态和 费米液体态的边界不再以量子临界点的形式出现,而可能展宽为一个"量子临界 相"。基于该材料的量子临界相图,我们可以明确地看出该量子临界相和自旋阻 挫的密切关系。

二:利用超声波测量得到了不同声波模式下的 CePdAl 的晶格弹性变化,并 绘制了反应"软硬度"的量子临界相图。根据磁性阻挫体系中磁弹耦合的特点,通 过弹性软化的程度表征了几何阻挫对不同相空间的影响。测量结果显示,所有变 磁相变都相应地对弹性常数产生了影响。但是,仅仅当声波振动方向在阻挫的 ab 面内时,可以观测到对应于量子顺磁态的异常弹性软化,进一步证实量子顺磁态 的起源和自旋阻挫的密切关系。

97

需要强调的是,对于自旋阻挫重费米子体系的研究才刚刚开始,这一新兴领 域还有非常多值得深入研究的问题,比如近藤金属中的几何阻挫可能是产生非常 规超导的新的路径,更低温度下是否有非常规超导,以及量子临界相内的热和电 输运是否符合 Wiedemann-Franz 法则等都是非常有兴趣的问题。另外,对于本论 文中发现的"量子临界相"这一自旋无序态,还没有深入的理论认识,我们的实验 尚不能回答其到底是什么样的量子态,有什么样的磁性关联,以及其安定化的必 要条件等问题。我们期待未来能有更多的理论和实验研究者来参与并探讨这些问 题。

参考文献

- P. Coleman, C. Pepin, Q. Si and R. Ramazashvili. How do Fermi liquids get heavy and die?
 J. Phys.-Condes. Matter 13, R723-R738, (2001).
- [2] P. Coleman. Heavy Fermions: Electrons at the Edge of Magnetism. Handbook of Magnetism and Advanced Magnetic Materials (Wiley, 2007).
- [3] P. Coleman. Heavy fermions: Dimensions are critical. *Nat. Mater.* **11**, 185-187, (2012).
- P. Gegenwart, Q. Si and F. Steglich. Quantum criticality in heavy-fermion metals. *Nature Physics* 4, 186-197, (2008).
- [5] L. Balents. Spin liquids in frustrated magnets. *Nature* **464**, 199-208, (2010).
- [6] O. A. Starykh. Unusual ordered phases of highly frustrated magnets: a review. *Rep. Prog. Phys.* 78, 23, (2015).
- [7] J. E. Greedan. Geometrically frustrated magnetic materials. J. Mater. Chem. 11, 37-53, (2001).
- [8] A. P. Ramirez. Strongly geometrically frustrated magnets. *Annu. Rev. Mater. Sci.* 24, 453-480, (1994).
- [9] Y. Tokiwa, J. J. Ishikawa, S. Nakatsuji and P. Gegenwart. Quantum criticality in a metallic spin liquid. *Nat. Mater.* 13, 356-359, (2014).
- [10] Y. Tokiwa, C. Stingl, M. S. Kim, T. Takabatake and P. Gegenwart. Characteristic signatures of quantum criticality driven by geometrical frustration. *Sci. Adv.* 1, 6, (2015).
- [11] Q. M. Si. Global magnetic phase diagram and local quantum criticality in heavy fermion metals. *Physica B* 378-80, 23-27, (2006).
- [12] P. Coleman and A. H. Nevidomskyy. Frustration and the Kondo Effect in Heavy Fermion Materials. J. Low Temp. Phys. 161, 182-202, (2010).
- [13] S. Doniach. Kondo lattice and weak antiferromagnetism. *Physica B & C* 91, 231-234, (1977).
- [14] G. R. Stewart. Heavy-fermion systems. *Rev. Mod. Phys.* 56, 755-787, (1984).
- [15] K. Andres, J. E. Graebner and H. R. Ott. 4f-virtual-bound-state formation in CeAl₃ at low-

temperatures. Phys. Rev. Lett. 35, 1779-1782, (1975).

- [16] F. Steglich, J. Aarts, C. D. Bredl, W. Lieke, D. Meschede, W. Franz and H. Schafer.
 Superconductivity in the presence of strong pauli paramagnetism CeCu₂Si₂. *Phys. Rev. Lett.* 43, 1892-1896, (1979).
- [17] E. Bucher, J. P. Maita, G. W. Hull, R. C. Fulton and A. S. Cooper. Electronic properties of beryllides of the rare earth and some actinides. *Phys. Rev. B* 11, 440-449, (1975).
- [18] H. R. Ott, H. Rudigier, Z. Fisk and J. L. Smith. UBe₁₃ an unconventional actinide superconductor. *Phys. Rev. Lett.* 50, 1595-1598, (1983).
- [19] H. von Lohneysen T. Pietrus, G. Portisch, H. G. Schlager, A. Schroder, M. Sieck and T. Trappmann. Non-Fermi-liquid behavior in a heavy-fermion alloy at a magnetic instability. *Phys. Rev. Lett.* **72**, 3262-3265, (1994).
- [20] H. von Lohneysen. Non-Fermi-liquid behaviour in the heavy-fermion system CeCu_{6-x}Au_x.
 J. Phys.-Condes. Matter 8, 9689-9706, (1996).
- [21] O. Stockert, H. von Lohneysen, A. Rosch, N. Pyka and M. Loewenhaupt. Two-dimensional fluctuations at the quantum-critical point of CeCu_{6-x}Au_x. *Phys. Rev. Lett.* 80, 5627-5630, (1998).
- [22] H. von Lohneysen. Non-Fermi-liquid behavior in heavy-fermion systems. *Physica B* 206, 101-107, (1995).
- [23] A. Rosch, A. Schroder, O. Stockert and H. von Lohneysen. Mechanism for the non-Fermiliquid behavior in CeCu_{6-x}Au_x. *Phys. Rev. Lett.* **79**, 159-162, (1997).
- [24] A. Schroder, G. Aeppli, R. Coldea, M. Adams, O. Stockert, H. von Lohneysen, E. Bucher,
 R. Ramazashvili and P. Coleman. Onset of antiferromagnetism in heavy-fermion metals.
 Nature 407, 351-355, (2000).
- [25] O. Trovarelli, C. Geibel, S. Mederle, C. Langhammer, F. M. Grosche, P. Gegenwart, M. Lang, G. Sparn and F. Steglich. YbRh2Si2: Pronounced non-Fermi-liquid effects above a low-lying magnetic phase transition. *Phys. Rev. Lett.* 85, 626-629, (2000).
- P. Gegenwart, J. Custers, C. Geibel, K. Neumaier, T. Tayama, K. Tenya, O. Trovarelli and F. Steglich. Magnetic-field induced quantum critical point in YbRh₂Si₂. *Phys. Rev. Lett.* 89, 4, (2002).

- [27] J. Custers, P. Gegenwart, H. Wilhelm, K. Neumaier, Y. Tokiwa, O. Trovarelli, C. Geibel, F. Steglich, C. Pepin and P. Coleman. The break-up of heavy electrons at a quantum critical point. *Nature* 424, 524-527, (2003).
- [28] N. D. Mathur, F. M. Grosche, S. R. Julian, I. R. Walker, D. M. Freye, R. K. W. Haselwimmer and G. G. Lonzarich. Magnetically mediated superconductivity in heavy fermion compounds. *Nature* 394, 39-43, (1998).
- [29] L. D. Landau. The theory of a Fermi liquid. Soviet Physics Jetp-Ussr 3, 920-925, (1957).
- [30] S. Paschen, T. Luhmann, S. Wirth, P. Gegenwart, O. Trovarelli, C. Geibel, F. Steglich, P. Coleman and Q. Si. Hall-effect evolution across a heavy-fermion quantum critical point. *Nature* 432, 881-885, (2004).
- [31] F. M. Grosche, S. R. Julian, N. D. Mathur and G. G. Lonzarich. Magnetic and superconducting phases of CePd₂Si₂. *Physica B* 223-24, 50-52, (1996).
- [32] F. M. Grosche, I. R. Walker, S. R. Julian, N. D. Mathur, D. M. Freye, M. J. Steiner and G.
 G. Lonzarich. Superconductivity on the threshold of magnetism in CePd₂Si₂ and CeIn₃. J.
 Phys.-Condes. Matter 13, 2845-2860, (2001).
- [33] D. Jaccard, K. Behnia and J. Sierro. Pressure-induced heavy fermion superconductivity of CeCu₂Ge₂. *Phys. Lett. A* 163, 475-480, (1992).
- [34] A. P. Ramirez, C. L. Broholm, R. J. Cava and G. R. Kowach. Geometrical frustration, spin ice and negative thermal expansion - the physics of underconstraint. *Physica B* 280, 290-295, (2000).
- [35] P. W. Anderson. Ordering and antiferromagnetism in ferrites. *Physical Review* 102, 1008-1013, (1956).
- [36] G. H. Wannier. Antiferromagnetism the trangular ising net. *Physical Review* 79, 357-364, (1950).
- [37] S. F. Edwards and P. W. Anderson. Theory of spin glasses. *Journal of Physics F-Metal Physics* 5, 965-974, (1975).
- [38] K. Binder and A. P. Young. Spin-glasses experimental facts, theoretical concepts, and open questions. *Rev. Mod. Phys.* 58, 801-976, (1986).
- [39] J. Villain. Insulating spin-glasses. Zeitschrift Fur Physik B-Condensed Matter 33, 31-42, (1979).

- [40] K. Binder and A. P. Young. Spin glasses experimental facts, theoretical concepts, and open questions. *Rev. Mod. Phys.* 58, 801-976, (1986).
- [41] J. A. Mydosh. Spin-glasses recent experiments and systems. J. Magn. Magn. Mater. 7, 237-248, (1978).
- [42] S. T. Bramwell and M. J. P. Gingras. Spin ice state in frustrated magnetic pyrochlore materials. *Science* 294, 1495-1501, (2001).
- [43] M. J. Harris, S. T. Bramwell, D. F. McMorrow, T. Zeiske and K. W. Godfrey. Geometrical frustration in the ferromagnetic pyrochlore Ho₂Ti₂O₇. *Phys. Rev. Lett.* **79**, 2554-2557, (1997).
- [44] D. J. P. Morris, D. A. Tennant, S. A. Grigera, B. Klemke, C. Castelnovo, R. Moessner, C. Czternasty, M. Meissner, K. C. Rule, J. U. Hoffmann, K. Kiefer, S. Gerischer, D. Slobinsky and R. S. Perry. Dirac strings and magnetic monopoles in the spin ice Dy₂Ti₂O₇. *Science* 326, 411-414, (2009).
- [45] A. P. Ramirez, A. Hayashi, R. J. Cava, R. Siddharthan and B. S. Shastry. Zero-point entropy in 'spin ice'. *Nature* **399**, 333-335, (1999).
- [46] C. Castelnovo, R. Moessner and S. L. Sondhi. Magnetic monopoles in spin ice. *Nature* 451, 42-45, (2008).
- [47] S. V. Isakov, R. Moessner and S. L. Sondhi. Why spin ice obeys the ice rules. *Phys. Rev. Lett.* 95, 4, (2005).
- [48] B. C. den Hertog and M. J. P. Gingras. Dipolar interactions and origin of spin ice in Ising pyrochlore magnets. *Phys. Rev. Lett.* 84, 3430-3433, (2000).
- [49] M. J. P. Gingras and B. C. den Hertog. Origin of spin-ice behavior in Ising pyrochlore magnets with long-range dipole interactions: an insight from mean-field theory. *Can. J. Phys.* 79, 1339-1351, (2001).
- [50] S. V. Isakov, K. Gregor, R. Moessner and S. L. Sondhi. Dipolar spin correlations in classical pyrochlore magnets. *Phys. Rev. Lett.* 93, 4, (2004).
- [51] P. W. Anderson. Resonating valence bonds new kind of insulator. *Materials Research Bulletin* 8, 153-160, (1973).
- [52] H. Iwase, M. Isobe, Y. Ueda and H. Yasuoka. Observation of spin gap in CaV₂O₅ by NMR.
 J. Phys. Soc. Jpn. 65, 2397-2400, (1996).

- [53] N. E. Brese and M. Okeeffe. Bond-valence parameters for solids. *Acta Crystallographica Section B-Structural Science* 47, 192-197, (1991).
- [54] H. Fan, V. Korepin and V. Roychowdhury. Entanglement in a valence-bond solid state. *Phys. Rev. Lett.* 93, (2004).
- [55] N. Read and S. Sachdev. Spin-peierls, valence-bond solid, and neel ground-states of lowdimensional quantum antiferromagnets. *Phys. Rev. B* 42, 4568-4589, (1990).
- [56] F. J. Jiang, M. Nyfeler, S. Chandrasekharan and U. J. Wiese. From an antiferromagnet to a valence bond solid: evidence for a first-order phase transition. *Journal of Statistical Mechanics-Theory and Experiment*, (2008).
- [57] F. Alet, A. M. Walczak and M. P. A. Fisher. Exotic quantum phases and phase transitions in correlated matter. *Physica a-Statistical Mechanics and Its Applications* 369, 122-142, (2006).
- [58] Y. Zhou, K. Kanoda and T. K. Ng. Quantum spin liquid states. *Rev. Mod. Phys.* 89, 50, (2017).
- [59] B. J. Powell and R. H. McKenzie. Quantum frustration in organic Mott insulators: from spin liquids to unconventional superconductors. *Rep. Prog. Phys.* 74, 60, (2011).
- [60] J. C. Domenge, P. Sindzingre, C. Lhuillier and L. Pierre. Twelve sublattice ordered phase in the J(1)-J(2) model on the kagome lattice. *Phys. Rev. B* **72**, 10, (2005).
- [61] S. Burdin, D. R. Grempel and A. Georges. in *Phys. Rev. B* 66, 6,(2002).
- [62] C. Lacroix. Frustrated metallic systems: A review of some peculiar behavior. J. Phys. Soc. Jpn. 79, 7, (2010).
- [63] K. Yoshimura, M. Shiga and Y. Nakamura. NMR study of magnetic state of RMn2 intermetallic compounds. II. R=heavy rare-earth. J. Phys. Soc. Jpn. 55, 3585-3595, (1986).
- [64] R. Ballou, C. Lacroix and M. D. Nunez Regueiro. Frustration-induced vanishing of magnetic moments in RMn₂ systems. *Phys. Rev. Lett.* 66, 1910-1913, (1991).
- [65] S. A. M. Mentink, A. Drost, G. J. Nieuwenhuys, E. Frikkee, A. A. Menovsky and J. A. Mydosh. Magnetic-ordering and frustration in hexagonal UNi₄B. *Phys. Rev. Lett.* 73, 1031-1034, (1994).
- [66] L. Keller, A. Donni, H. Kitazawa and B. van den Brandt. Geometrical frustration and incommensurate magnetic ordering in CePdAI: a low-temperature neutron-diffraction study.

Applied Physics a-Materials Science & Processing 74, S686-S688, (2002).

- [67] A. Donni, G. Ehlers, H. Maletta, P. Fischer, H. Kitazawa and M. Zolliker. Geometrically frustrated magnetic structures of the heavy-fermion compound CePdAl studied by powder neutron diffraction. J. Phys.-Condes. Matter 8, 11213-11229, (1996).
- [68] M. D. NunezRegueiro, C. Lacroix and B. Canals. Magnetic ordering in the frustrated Kondo lattice compound CePdAl. *Physica C* 282, 1885-1886, (1997).
- [69] J. Rossatmignod, P. Burlet, J. Villain, H. Bartholin, W. Tchengsi, D. Florence and O. Vogt.Phase-diagram and magnetic-structures of CeSb. *Phys. Rev. B* 16, 440-461, (1977).
- [70] J. Rossatmignod, P. Burlet, S. Quezel, J. M. Effantin, D. Delacote, H. Bartholin, O. Vogt and D. Ravot. Magnetic-properties of cerium monopnictides. *J. Magn. Magn. Mater.* 31-4, 398-404, (1983).
- [71] M. Shahzad and P. Sengupta. Noncollinear magnetic ordering in a frustrated magnet: Metallic regime and the role of frustration. *Phys. Rev. B* 96, 7, (2017).
- S. Nakatsuji, Y. Machida, Y. Maeno, T. Tayama, T. Sakakibara, J. van Duijn, L. Balicas, J.
 N. Millican, R. T. Macaluso and J. Y. Chan. Metallic spin-liquid behavior of the geometrically frustrated Kondo lattice Pr₂Ir₂O₇. *Phys. Rev. Lett.* 96, 4, (2006).
- [73] S. Massidda, J. J. Yu and A. J. Freeman. Electronic-structure and properties of superconducting LiTi₂O₄. *Phys. Rev. B* 38, 11352-11357, (1988).
- Y. Machida, S. Nakatsuji, Y. Maeno, T. Tayama and T. Sakakibara. Geometrical frustration and spin-liquid behavior of the metallic pyrochlore antiferromagnet Pr2Ir2O7. *J. Magn. Magn. Mater.* 310, 1328-1330, (2007).
- [75] V. Fritsch, S. Lucas, Z. Huesges, A. Sakai, W. Kittler, C. Taubenheim, S. Woitschach, B.
 Pedersen, K. Grube, B. Schmidt, P. Gegenwart, O. Stockert and H. V. Lohneysen. CePdAl
 a Kondo lattice with partial frustration. *Journal of Physics: Conference Series* 807, (2017).
- [76] K. Umeo, K. Yamane, Y. Muro, K. Katoh, Y. Niide, A. Ochiai, T. Morie, T. Sakakibara and T. Takabatake. Successive magnetic transitions in a frustrated compound YbAgGe. *J. Phys. Soc. Jpn.* 73, 537-540, (2004).
- [77] R. Pottgen, B. Gibson and R. K. Kremer. Crystal structure of ytterbium silver germanide, YbAgGe. *Zeitschrift Fur Kristallographie* 212, 58-58, (1997).

- [78] Y. Shimura, T. Sakakibara, K. Iwakawa, K. Sugiyama and Y. Onuki. low temperature magnetization of Yb₂Pt₂Pb with the Shastry-Sutherland type lattice and a high-rank multipole interaction. J. Phys. Soc. Jpn. 81, (2012).
- [79] R. Pottgen, P. E. Arpe, C. Felser, D. Kussmann, R. Mullmann, B. D. Mosel, B. Kunnen and G. Kotzyba. Structure and properties of YbZnSn, YbAgSn, and Yb₂Pt₂Pb. *J. Solid State Chem.* 145, 668-677, (1999).
- [80] M. S. Kim, M. C. Bennett and M. C. Aronson. Yb₂Pt₂Pb: Magnetic frustration in the Shastry-Sutherland lattice. *Phys. Rev. B* 77, 7, (2008).
- [81] J. Custers, P. Gegenwart, C. Geibel, F. Steglich, P. Coleman and S. Paschen. Evidence for a Non-Fermi-Liquid Phase in Ge-Substituted YbRh₂Si₂. *Phys. Rev. Lett.* **104**, 4, (2010).
- [82] B. Gibson, R. Pottgen, R. K. Kremer, A. Simon and K. R. A. Ziebeck. Ternary germanides LnAgGe (Ln=Y,Sm,Gd-Lu) with ordered Fe₂P-type structure. *J. Alloy. Compd.* 239, 34-40, (1996).
- [83] F. Merlo, M. Pani and M. L. Fornasini. RMX compounds formed by alkaline earths, europium and ytterbium .4. Ternary phases with M=Ag and X=Si, Ge, Sn, Pb. J. Alloy. Compd. 232, 289-295, (1996).
- [84] B. Fak, D. F. McMorrow, P. G. Niklowitz, S. Raymond, E. Ressouche, J. Flouquet, P. C. Canfield, S. L. Bud'ko, Y. Janssen and M. J. Gutmann. An inelastic neutron scattering study of single-crystal heavy-fermion YbAgGe. J. Phys.-Condes. Matter 17, 301-311, (2005).
- [85] S. L. Bud'ko, E. Morosan and P. C. Canfield. Magnetic field induced non-Fermi-liquid behavior in YbAgGe single crystals. *Phys. Rev. B* 69, 8, (2004).
- [86] P. G. Niklowitz, G. Knebel, J. Flouquet, S. L. Bud'ko and P. C. Canfield. Field-induced non-Fermi-liquid resistivity of stoichiometric YbAgGe single crystals. *Phys. Rev. B* 73, 9, (2006).
- [87] Y. Tokiwa, A. Pikul, P. Gegenwart, F. Steglich, S. L. Bud'ko and P. C. Canfield. Lowtemperature thermodynamic properties of the heavy-fermion compound YbAgGe close to the field-induced quantum critical point. *Phys. Rev. B* 73, 6, (2006).
- [88] M. A. Subramanian, G. Aravamudan and G. V. S. Rao. Oxide pyrochlores a review. Prog. Solid State Chem. 15, 55-143, (1983).

- [89] Y. Machida, S. Nakatsuji, Y. Maeno, T. Tayama, T. Sakakibara and S. Onoda. Unconventional anomalous Hall effect enhanced by a noncoplanar spin texture in the frustrated Kondo lattice Pr2Ir2O7. *Phys. Rev. Lett.* 98, (2007).
- [90] J. Kondo. Resistance minimum in dilute magnetic alloys. *Prog. Theor. Phys.* **32**, 37-+, (1964).
- [91] M. A. Ruderman and C. Kittel. Indirect exchange coupling of nuclear magnetic moments by conduction electrons. *Physical Review* 96, 99-102, (1954).
- [92] T. Kasuya. A theory of metallic ferromagnetism and antiferromagnetism on zeners model. *Prog. Theor. Phys.* 16, 45-57, (1956).
- [93] K. Yosida. Magnetic properties of Cu-Mn alloys. *Physical Review* **106**, 893-898, (1957).
- [94] J. A. Hertz. Quantum critical phenomena. *Phys. Rev. B* 14, 1165-1184, (1976).
- [95] S. Chakravarty, B. I. Halperin and D. R. Nelson. Two-dimensional quantum heisenbergantiferromagnet at low-temperatures. *Phys. Rev. B* **39**, 2344-2371, (1989).
- [96] M. A. Continentino, G. M. Japiassu and A. Troper. Critical approach to the coherence transition in Kondo lattices. *Phys. Rev. B* 39, 9734-9737, (1989).
- [97] A. J. Millis. Effect of a nonzero temperature on quantum critical-points in itinerant fermion systems. *Phys. Rev. B* 48, 7183-7196, (1993).
- [98] T. Moriya and T. Takimoto. Anomalous properties around magnetic instability in heavyelectron systems. J. Phys. Soc. Jpn. 64, 960-969, (1995).
- [99] Q. M. Si, S. Rabello, K. Ingersent and J. L. Smith. Locally critical quantum phase transitions in strongly correlated metals. *Nature* 413, 804-808, (2001).
- [100] T. Senthil, M. Vojta and S. Sachdev. Weak magnetism and non-Fermi liquids near heavyfermion critical points. *Phys. Rev. B* 69, (2004).
- [101] T. Senthil, A. Vishwanath, L. Balents, S. Sachdev and M. P. A. Fisher. Deconfined quantum critical points. *Science* 303, 1490-1494, (2004).
- [102] Q. M. Si, S. Rabello, K. Ingersent and J. L. Smith. Local fluctuations in quantum critical metals. *Phys. Rev. B* 68, (2003).
- [103] J. X. Zhu, D. R. Grempel and Q. M. Si. Continuous quantum phase transition in a Kondo lattice model. *Phys. Rev. Lett.* 91, (2003).

- [104] M. T. Glossop and K. Ingersent. Magnetic quantum phase transition in an anisotropic kondo lattice. *Phys. Rev. Lett.* **99**, (2007).
- [105] J.-X. Zhu, S. Kirchner, R. Bulla and Q. Si. Zero-temperature magnetic transition in an easyaxis kondo lattice model. *Phys. Rev. Lett.* 99, (2007).
- [106] E. Lebanon and P. Coleman. Fermi liquid identities for the infinite-U multichannel Anderson model. *Phys. Rev. B* **76**, 17, (2007).
- [107] M. Vojta. Electronic properties of disordered valence-bond stripes in cuprate superconductors. *Phys. Rev. B* 78, 6, (2008).
- [108] Q. M. Si and E. Abrahams. Strong correlations and magnetic frustration in the high T(c) iron pnictides. *Phys. Rev. Lett.* **101**, 4, (2008).
- [109] K. Latka, M. Rams, R. Kmiec, R. Kruk, A. W. Pacyna, T. Schmidt, G. Kotzyba, R. Pottgen and D. Johrendt. Structure and properties of CeRhSn - A valence fluctuating system. *Acta Physica Polonica B* 34, 1225-1229, (2003).
- [110] B. Chevalier, C. P. Sebastian and R. Poettgen. Hydrogenation of the intermediate valence ternary stannides CeRhSn and CeIrSn. *Solid State Sciences* 8, 1000-1008, (2006).
- [111] T. Schmidt, D. Johrendt, C. P. Sebastian, R. Pottgen, K. Latka and R. Kmiec. Structure, chemical bonding and Sn-119 Mossbauer spectroscopy of LaRhSn and CeRhSn. *Zeitschrift Fur Naturforschung Section B-a Journal of Chemical Sciences* 60, 1036-1042, (2005).
- [112] S. Tsuda, C. L. Yang, Y. Shimura, K. Umeo, H. Fukuoka, Y. Yamane, T. Onimaru, T. Takabatake, N. Kikugawa, T. Terashima, H. T. Hirose, S. Uji, S. Kittaka and T. Sakakibara. Metamagnetic crossover in the quasikagome Ising Kondo-lattice compound CeIrSn. *Phys. Rev. B* 98, (2018).
- [113] F. Hulliger. On new ternary aluminides LnPdAl and LnPtAl. J. Alloy. Compd. 196, 225-228, (1993).
- [114] F. Hulliger. On the rare-earth palladium aluminides LnPdAl. J. Alloy. Compd. 218, 44-46, (1995).
- [115] K. Kamioka, A. Oyamada, K. Hashi, S. Maegawa, T. Goto, H. Kitazawa and Y. Isikawa. NMR studies of CePdA1 below 1 K. *Physica B* 259-61, 121-122, (1999).
- [116] B. Xue, H. Schwer and F. Hulliger. Structure of CePdAl. Acta Crystallographica Section C-Crystal Structure Communications 50, 338-340, (1994).

- [117] E. Bauer. Anomalous properties of Ce-Cu- and Yb-Cu-based compounds. Advances in Physics 40, 417-534, (1991).
- [118] H. Maletta and V. Sechovsky. Magnetic-properties of TbNiAl. J. Alloy. Compd. 207, 254-256, (1994).
- [119] H. Kitazawa, A. Matsushita, T. Matsumoto and T. Suzuki. Electronic and thermal-properties of CePdAl. *Physica B* 199, 28-30, (1994).
- [120] J. Tang, A. Matsushita, H. Kitazawa and T. Matsumoto. High pressure effect on the magnetic transition in heavy fermion systems CePd₂Al₃ and CePdAl. *Physica B* 217, 97-101, (1996).
- [121] Y. Isikawa, T. Kuwai, T. Mizushima, T. Abe, G. Nakamura and J. Sakurai. Disappearance of magnetic moments in CePd_{1-x}Ni_xAl. *Physica B* 281, 365-366, (2000).
- [122] V. Fritsch, N. Bagrets, G. Goll, W. Kittler, M. J. Wolf, K. Grube, C. L. Huang and H. von Lohneysen. Approaching quantum criticality in a partially geometrically frustrated heavyfermion metal. *Phys. Rev. B* 89, 6, (2014).
- [123] T. Goto, S. Hane, K. Umeo, T. Takabatake and Y. Isikawa. Field-induced magnetic transitions and pressure-induced magnetic instability in CePdAl. *Journal of Physics and Chemistry of Solids* 63, 1159-1163, (2002).
- [124] H. London, G. R. Clarke and E. Mendoza. Osmotic pressure of He³ in liquid He⁴, with proposals for a refrigerator to work below 1°K. *Physical Review* 128, 1992-&, (1962).
- [125] B. Neganov, N. Borisov and M. Liburg. A method of producing very low temperatures by dissolving He³ In He⁴. Soviet Physics Jetp-Ussr 23, 959-&, (1966).
- [126] H. E. Hall, P. J. Ford and K. Thompson. A helium-3 dilution refrigerator. *Cryogenics* 6, 80-&, (1966).
- [127] R. Radebaugh and J. D. Siegwarth. Dilution refrigerator technology. *Cryogenics* 11, 368-+, (1971).
- [128] W. J. Huiskamp and O. V. Lounasmaa. Ultralow temperatures how and why. *Rep. Prog. Phys.* 36, 423-496, (1973).
- [129] D. O. Edwards, D. F. Brewer, P. Seligman, M. Skertic and M. Yaqub. Solubility of He³ in Liquid He⁴ at 0 K. *Phys. Rev. Lett.* 15, 773-&, (1965).

- [130] A. Eiling and J. S. Schilling. Pressure and temperature dependence of electrical resistivity of Pb and Sn from 1-300K and 0-10 GPa-use as continuous resistive pressure monitor accurate over wide temperature range; superconductivity under pressure in Pb, Sn and In. *Journal of Physics F-Metal Physics* 11, 623-639, (1981).
- [131] Lüthi and Bruno. *Physical Acoustics in the Solid State*. (Springer, 2005).
- [132] A. Oyamada, S. Maegawa, M. Nishiyama, H. Kitazawa and Y. Isikawa. Ordering mechanism and spin fluctuations in a geometrically frustrated heavy-fermion antiferromagnet on the Kagome-like lattice CePdAl: A Al-27 NMR study. *Phys. Rev. B* 77, (2008).
- [133] S. Hane, T. Goto, T. Abe and Y. Isikawa. Magnetic behavior of CePdAl under high pressures and high magnetic fields. *Physica B* 281, 391-392, (2000).
- [134] K. Prokes, P. Manuel, D. T. Adroja, H. Kitazawa, T. Goto and Y. Isikawa. Magnetic order in CePdAl single crystal: Effect of magnetic field. *Physica B* 385, 359-362, (2006).
- C. Schank, F. Jahrling, L. Luo, A. Grauel, C. Wassilew, R. Borth, G. Olesch, C. D. Bredl,
 C. Geibel and F. Steglich. 4f-conduction electron hybridization in ternary Ce-Tm-Al
 compounds. J. Alloy. Compd. 207, 329-332, (1994).
- [136] S. Lucas, K. Grube, C. L. Huang, A. Sakai, S. Wunderlich, E. L. Green, J. Wosnitza, V. Fritsch, P. Gegenwart, O. Stockert and H. von Lohneysen. Entropy Evolution in the Magnetic Phases of Partially Frustrated CePdAl. *Phys. Rev. Lett.* **118**, 5, (2017).
- K. Mochidzuki, Y. Shimizu, A. Kondo, S. Nakamura, S. Kittaka, Y. Kono, T. Sakakibara,
 Y. Ikeda, Y. Isikawa and K. Kindo. Thermodynamic Investigation of Metamagnetic Transitions and Partial Disorder in the Quasi-Kagome Kondo Lattice CePdAl. J. Phys. Soc. Jpn. 86, 5, (2017).
- [138] J. Custers, P. Gegenwart, C. Geibel, F. Steglich, P. Coleman and S. Paschen. Evidence for a Non-Fermi-Liquid Phase in Ge-Substituted YbRh₂Si₂. *Phys. Rev. Lett.* **104**, (2010).
- [139] S. Friedemann, T. Westerkamp, M. Brando, N. Oeschler, S. Wirth, P. Gegenwart, C. Krellner, C. Geibel and F. Steglich. Detaching the antiferromagnetic quantum critical point from the Fermi-surface reconstruction in YbRh₂Si₂. *Nature Physics* 5, 465-469, (2009).
- [140] Y. Tokiwa, A. Pikul, P. Gegenwart, F. Steglich, S. L. Bud'ko and P. C. Canfield. Lowtemperature thermodynamic properties of the heavy-fermion compound YbAgGe close to

the field-induced quantum critical point. Phys. Rev. B 73, (2006).

- [141] S. L. Bud'ko, E. Morosan and P. C. Canfield. Magnetic field induced non-Fermi-liquid behavior in YbAgGe single crystals. *Phys. Rev. B* 69, (2004).
- [142] P. G. Niklowitz, G. Knebel, J. Flouquet, S. L. Bud'ko and P. C. Canfield. Field-induced non-Fermi-liquid resistivity of stoichiometric YbAgGe single crystals. *Phys. Rev. B* 73, (2006).
- [143] T. Tomita, K. Kuga, Y. Uwatoko, P. Coleman and S. Nakatsuji. Strange metal without magnetic criticality. *Science* 349, 506-509, (2015).
- [144] S. Watanabe and K. Miyake. Robustness of quantum criticality of valence fluctuations. J. *Phys. Soc. Jpn.* 82, 4, (2013).
- [145] A. Ramires. Frustration can be critical. *Nature Physics* 15, 1212-1214, (2019).

致 谢

转眼之间, 六年的博士生涯已经过去。回首这几年的时光, 我走过了非常重要的一段人生旅程, 一路上得到了很多来自老师和同学的帮助, 因此我十分珍视这六年来的时光。我一直以来都对物理所充满感激之情, 这里给我提供了很好的学习环境, 让我能够在这几年中心无旁骛的做自己喜欢做的事情。这一路上, 当然并不全都是充满阳光的日子, 也有心情低落的时刻, 但是周围老师和同学的宽容和友爱, 使我能够一直乐观的走过来。

在读博的六年时光里,首先要感谢的就是我的导师孙培杰老师,孙老师是 一个非常认真负责的导师,刚进组的时候,孙老师带着师兄和我一起在实验室搭 极低温测量系统,从仪器到软件,孙老师都是亲力亲为,有几次夜里测试出现问 题,孙老师都赶过来解决。现在回想以来,正是导师认真对待科研的态度,使我 能够很快的进入到一个很有挑战的研究领域中。从最开始对于研究方向完全没有 概念,到逐步深入到这一领域之中,孙老师给了我悉心的指导和帮助。孙老师对 于科研有着自己的坚持,这是我非常敬佩的,孙老师一直以来都不追逐热点来做 研究,而总是一点一点的坚持自己的研究特色,做独树一帜的研究。正是孙老师 的坚持,才使得我们组能够做出有影响力的工作。另外孙老师经常指出我工作上 的不足,使我能够在迷茫的时候即时反思自己的问题,现在看来,我从中收益很 多。

其次我要感谢我的师兄张佳浩,师兄只比我高一级,可是做事方面却非常 认真,很有大师兄的风范。我从进组以后就跟着师兄做实验,从最基本的焊电极 到复杂的压力实验。我有四年的时间都是和师兄一起工作,这中间师兄给了我非 常大的帮助。另外我要感谢同组的胡斯勒同学、两个师弟吕孟和王振以及项俊森 师兄,我们在学习和生活中建立的很好的友谊,正是组内友爱的氛围,使我能够 在研究进展不顺利的时候,一直有很好的心态来面对。

我还要对帮助过我的各位老师和同学致以感谢,读博期间,我得到了很多 老师的指导和帮助。感谢 Frank Steglich 教授,每次来访的时候,都有机会能够 跟 Frank Steglich 教授交流学术问题,作为我们领域内的前辈,他对于学术严谨

111

认真的态度以及极大的学术热情,非常值得我来学习。感谢杨义峰老师, 雒建林 老师和李岗老师在组会上对我工作的指导。感谢吴伟师兄, 吴德胜以及邵玉婷同 学在学习和生活中给我的帮助。感谢读博期间的小伙伴咸海杰, 孔文杰, 王乐, 房驰, 吴义成, 冯子力, 潘如豪, 朱亮, 伊长江, 姜红玉, 徐纪玉, 愿友谊长存。

最后我要感谢我的家人,感谢我的女朋友郭雪莲对我的包容、理解和支持, 使我能够专注于学业。感谢我的父母和爷爷奶奶,在这二十九年的时间里,正是 我父母和爷爷奶奶的默默付出,才有了今天的我,在二十一年的求学之路上,有 了你们的支持我才能够走过来。

作者简历及攻读学位期间发表的学术论文与研究成果

作者简历:

2010年09月——2014年06月,在北京科技大学材料科学与工程学院获得学士学位。

2014年09月——2020年06月,在中国科学院物理研究所攻读博士学位。

获奖情况:2016-2017 学年荣获中国科学院物理研究所所长奖学金表彰奖; 2017-2018 学年荣获中国科学院物理研究所所长奖学金表彰奖; 2018-2019 学年荣获中国科学院大学三好学生; 2019-2020 学年荣获中国科学院物理研究所所长奖学金特优奖;

已发表(或正式接受)的学术论文:

- [1] Hengcan Zhao, Jiahao Zhang, Meng Lyu, Sebastian Bachus, Yoshifumi Tokiwa, Philipp Gegenwart, Shuai Zhang, Jinguang Cheng, Yi-feng Yang, Genfu Chen, Yosikazu Isikawa, Qimiao Si*, Frank Steglich*, and Peijie Sun*, Quantum-critical phase from frustrated magnetism in a correlated metal, *Nature Physics* 15, 1261–1266 (2019). [see also View&News by A. Ramires, *Nat. Phys.* 15, 1212 (2019).
- [2] Hengcan Zhao, Jiahao Zhang, Sile Hu, Yosikazu Isikawa, Jianlin Luo, Frank Steglich, and Peijie Sun*, Temperature-field phase diagram of geometrically frustrated CePdAl, *Phys. Rev.* B 94, 235131 (2016).
- [3] Jiahao Zhang, Hengcan Zhao, Meng Lv, Sile Hu, Yosikazu Isikawa, Yi-feng Yang, Qimiao Si, Frank Steglich, and Peijie Sun*, Kondo destruction in a quantum paramagnet with magnetic frustration, *Phys. Rev. B* 97, 235117 (2018).
- [4] Jiahao Zhang, Sile Hu, Hengcan Zhao, Pu Wang, A. M. Strydom, Jianlin Luo, Frank Steglich, and Peijie Sun*, Magnetotransport properties of CeRu2Al10: Similarities to URu2Si2, *Phys. Rev. B* 94, 235120 (2016).

- [5] Junsen Xiang, Sile Hu, Meng Lv, Jiahao Zhang, Hengcan Zhao, Genfu Chen, Wei Li, Ziyu Chen and Peijie Sun*, Anisotropic thermal and electrical transport of Weyl semimetal TaAs, J. Phys.: Condens. Matter 29, 485501 (2017).
- [6] Honghong Wang, Jing Guo, Eric D. Bauer, Vladimir A. Sidorov, Hengcan Zhao, Jiahao Zhang, Yazhou Zhou, Zhe Wang, Shu Cai, Ke Yang, Aiguo Li, Peijie Sun, Yi-feng Yang, Qi Wu, Tao Xiang, J. D. Thompson*, and Liling Sun*, Anomalous connection between antiferromagnetic and superconducting phases in the pressurized noncentrosymmetric heavy-fermion compound CeRhGe3, *Phys. Rev. B* **99**, 024504 (2019).
- [7] Jiahao Zhang, Shuai Zhang, Ziheng Chen, Meng Lv, Hengcan Zhao, Yi-feng Yang, Genfu Chen, and Peijie Sun*, Pressure effect in the Kondo semimetal CeRu4Sn6 with nontrivial topology, *Chin. Phys. B* 27, 097103 (2018).