

• 专题一:双清论坛“碳基量子磁体的表面精准合成及其多域物态调控” •

DOI: 10.3724/BNSFC-2025-0146

碳基量子磁体的理论计算研究*

殷翼扬^{1,2} 张礼智^{2**} 杜世萱^{1**}

1. 中国科学院物理研究所, 北京 100190

2. 国家纳米科学中心, 北京 100190

[摘要] 碳基量子磁体作为自旋电子学与量子科技交叉前沿的关键材料体系,因其弱自旋—轨道耦合、长相干时间及可调控的磁性,在下一代低功耗自旋电子器件和量子信息处理中展现出巨大潜力。然而,该领域在磁性起源理解、精准合成调控、量子态稳定性及理论模型构建等方面仍面临一系列挑战。为推动关键问题凝练与发展路径规划,国家自然科学基金委员会组织第417期“双清论坛”,梳理研究现状,凝练自旋态精确操控、量子相干性维持及多物理场协同调控下多域物态演化的表界面科学问题,并形成面向国家量子科技战略需求的研究布局。本文基于论坛共识,系统梳理了碳基量子磁体的研究现状、关键科学问题与前沿理论研究进展,总结了包括新型石墨烯纳米带、交变磁性金属—有机框架等在内的前沿理论成果,并展望了多尺度计算、人工智能辅助设计等理论方法在推动材料理论设计与功能实现中的核心作用,以期为该领域的未来发展提供理论参考与方向指引。

[关键词] 磁性材料;碳基;量子计算;自旋电子学;理论计算

磁性材料是量子材料体系的重要组成部分,其应用遍及信息、能源、生物等多个关键领域。当前,硅基半导体技术的发展逐渐接近其物理极限,为突破传统电子器件的性能瓶颈,探索新材料与新原理成为当务之急。在此背景下,自旋电子学应运而生。该技术利用电子内禀的自旋自由度进行信息存储、传输与处理,有望催生兼具高集成度、低功耗和强大处理能力的下一代纳米电子器件。碳基材料的应用将减少行业对铜、镓等关键金属元素的依赖,具有重要的战略意义^[1]。碳基量子磁体作为自旋电子学与量子科技交叉前沿的关键材料体系,因其弱自旋—轨道耦合和优异的量子相干性等特性,在分子电子学、量子信息处理等领域展现出巨大潜力。实现碳基材料磁性的精准调控,是开发高速、低能耗碳基自旋电子学器件以及实现量子计算的坚实基础。碳基磁性量子材料的早期研究主要集中于石墨烯、碳纳米管等材料。利用精准的化学修饰、缺陷工程与分子设计,能够有效调控其磁交换作用与量子态,显著延长电子自旋

相干时间,从而支撑其走向实际应用。

数十年来,碳基量子磁体在理论和实验领域均得到了长足发展。研究已从早期对石墨烯、碳纳米管等传统材料的探索,扩展到石墨炔、磁性富勒烯及分子基磁性材料等多元体系。通过原子级精准合成、缺陷工程与化学掺杂等策略,研究者成功在多种碳基平台上引入了本征磁性,并在部分材料体系实现了对磁交换作用与量子态的有效调控^[2-8]。然而,该领域仍面临诸多严峻挑战:原子级精准合成能力与结构可控性仍需突破;碳基磁体的环境稳定性与量子相干时间的维持亟待解决;对磁有序微观起源、多体量子纠缠及宏观量子现象的理解尚不深入;复杂体系中的强关联效应给理论建模与计算带来困难。这些挑战既是当前研究的焦点,也为未来通过多尺度理论模拟、人工智能辅助设计与实验表征的深度融合,最终实现碳基量子磁体的功能化设计与器件集成指明了方向。

为凝练关键科学问题、规划未来发展方向,国家自

收稿日期:2025-10-31; 修回日期:2025-12-21

* 本文根据国家自然科学基金委员会第417期“双清论坛”讨论的内容整理。

** 通信作者, Email: sxdu@iphy.ac.cn; zhanglz@nanoctr.cn

引用格式: 殷翼扬, 张礼智, 杜世萱. 碳基量子磁体的理论计算研究. 中国科学基金, 2026, 40(3): 475-483.

Yin YY, Zhang LZ, Du SX. Carbon-based quantum magnets for spintronics and quantum information: A review on theoretic studies. Bulletin of National Natural Science Foundation of China, 2026, 40(3): 475-483. (in Chinese)

然科学基金委员会召开了主题为“碳基量子磁体的表面精准合成及其多域物态调控”的双清论坛。论坛紧扣国家量子科技战略需求与国际科学前沿,重点围绕碳基量子磁体的表面精准制备、多域物态表征及原型器件集成等核心议题展开了深入研讨。本文旨在系统梳理碳基量子磁体领域的研究现状、关键科学问题与挑战以及国内外前沿理论研究成果,以期对相关领域的未来发展提供参考。

1 研究背景

1.1 碳基量子磁性材料的分类与主要特性

碳基量子磁体是指以碳元素为主要骨架并表现出本征磁性的一类量子材料。根据其碳骨架的拓扑结构和维度的不同,主要可分为以下几类:石墨烯基材料(石墨烯量子点^[9,10]、石墨烯纳米带^[11-20]、转角石墨烯等)、石墨炔基材料^[21]、富勒烯材料^[22]、碳纳米管材料^[23-27]以及有机磁体(单分子磁体、一维磁性分子链、二维磁性有机框架)^[28-37](图1)。这些材料为研究低维碳材料的磁性提供了丰富的平台。自2006年磁性石墨烯纳米带的磁性特征被理论预言以来^[38],碳基磁性量子材料的理论和实验研究均取得长足进步。

1.2 纯碳骨架磁性材料

纯碳骨架磁性材料是碳基量子磁体研究的基础,主要包括石墨烯基材料、碳纳米管、石墨烯摩尔超晶格、石墨炔及富勒烯等体系,在零维、一维以及二维磁性量子材料等领域均占据重要地位。这类材料通常需要借助外部设计策略(如边界、缺陷、掺杂等)来引入和调控其

磁序。

石墨烯类碳基磁性材料是碳基磁性量子材料家族中发现较早、探索相对较为充分的一类成员。石墨烯碳基骨架具有标志性的平面六元环结构,其周期性结构不具有本征磁性,需通过其他设计策略引入自旋极化。主要包括引入边界、缺陷工程以及官能团修饰等。石墨烯基磁性材料根据其结构特征可以分为石墨烯量子点、石墨烯纳米带以及石墨烯摩尔超晶格几大类。石墨烯量子点是横向尺寸在30 nm以内的一个或多个石墨烯原子层,其纳米尺度引发的量子限域效应,使石墨烯量子点展现出独特的光电性质。研究表明,本征的石墨烯量子点通常呈非磁性,且合成过程中高温退火引发的边缘缺陷与重构也会抑制其磁性边界态,而羟基钝化处理可诱导其边缘产生磁性边界态^[1],这为设计与制备磁性石墨烯量子点指明了新的路径。石墨烯纳米带是一种在一个维度上具有纳米级宽度的准一维石墨烯结构。其中,具有锯齿形边缘的石墨烯纳米带(Zigzag Graphene Nanoribbons, ZGNRs)因其独特的电子结构展现出丰富的磁学行为。理论研究表明,ZGNRs的边缘态具有自旋极化特性^[5],这种本征磁序为实现低功耗、高性能的自旋逻辑器件和数据存储提供了可能。然而,ZGNRs的边缘具有高反应活性,且其边缘态易与常用金属衬底发生强烈耦合,阻碍了对本征磁性的直接探测。近年来,随着“自下而上”表面合成技术的发展,研究者已能制备具有原子级精确边界的ZGNRs,并通过引入氮等原子进行取代掺杂以稳定其边缘结构^[39]。例如,在氮掺杂的6-ZGNR中,扫描隧道谱直接观测到其边缘态的自旋极化特征,结合第一性原理计算,揭示了约100 meV的自旋劈裂,有力证实了其边缘磁序^[12]。这些进展直接验证了ZGNRs的磁性边界态,推动了其向功能性纳米自旋器件的发展。石墨烯摩尔超晶格是由两层及以上石墨烯(或其他二维材料)通过旋转或晶格失配形成的周期性摩尔超晶格,是探索新奇凝聚态物理现象的理想平台。其磁性来源主要包括磁性掺杂和电子平带的特定填充。后者是指当摩尔平带被部分填充时,局域电子间的强库仑相互作用可自发导致自旋极化。这些丰富的物理性质可通过转角、压力、电场等多维度手段进行原位精密调控,使其在理解碳基磁性起源与调控机制方面独具优势。

碳纳米管是由一层或多层碳骨架中空卷曲形成的管状材料。碳纳米管作为典型的一维碳材料,其本身通常呈非磁性,因此需要通过掺杂异质元素等方式引入磁性。较为常见的掺杂方法是将磁性纳米颗粒(如磁性金属Co、Ni及Fe₃O₄等)通过化学手段附着于外壁或是填入

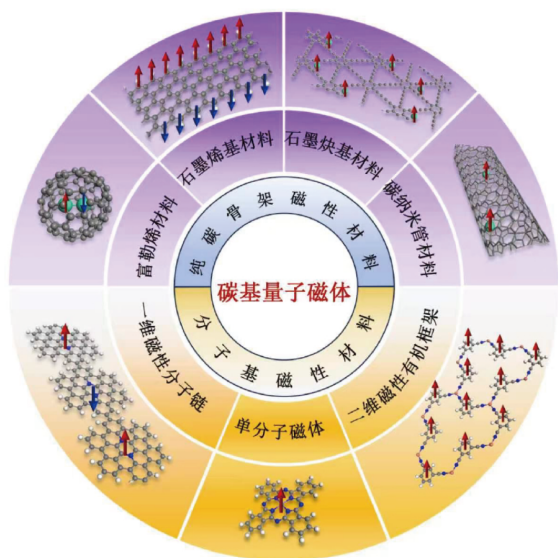


图1 碳基量子磁体的分类

Fig.1 Classification of Carbon-based Quantum Magnetic Materials

空腔。此外,也可通过化学气相沉积法,选择合适的磁性金属前驱体,直接一体化合成出内含磁性颗粒的碳纳米管。磁性碳纳米管在保留其优异力学性质的同时,还具备了外磁场下的可控性,这使其在生物医学等多个领域展现出应用潜力。

石墨炔是由 sp 杂化的1,3-二炔键和 sp^2 杂化的苯环直接连接形成的二维平面结构,具有丰富的化学键、大共轭体系和可控的原子掺杂特性。理论计算表明,由于其独特的结构与 sp 杂化碳的存在,石墨炔具有半导体特性和本征顺磁性。更重要的是,通过过渡金属原子锚定在炔键位点或进行氮掺杂等方法,理论预测能够有效引入并调控其铁磁或反铁磁序^[21,40,41],使其在磁性半导体领域具有应用潜力。然而,其发展仍面临高质量材料规模化合成、结构稳定性及磁性机理深入理解等挑战。

富勒烯是一种笼状全碳分子,本身呈抗磁性,需通过掺杂调控等手段引入或诱导磁性,较为常见的是络合磁性金属原子。近年来,磁性富勒烯研究取得了显著进展,以镝金属富勒烯分子为代表的内嵌金属富勒烯体系展现出良好的应用潜力。中国科学技术大学团队制备出首例含Dy—Dy共价键的 $Dy_2@C_{82}$ 单分子磁体,其阻塞温度达27.2 K^[42]。北京大学团队利用氮掺杂富勒烯碳笼稳定低配位单金属中心,在 $Dy@C_{81}N$ 中实现了45 K的高磁阻塞温度^[43]。这些成果凸显了磁性富勒烯在量子信息、高密度存储和自旋电子学等前沿领域的应用前景。

1.3 分子基磁性材料

分子基磁性材料是指以有机分子为主要组成、表现出宏观磁有序的一类材料,包括不含金属的纯有机磁体以及金属—有机框架等杂化体系。这类材料的磁性起源多种多样,包括未配对电子通过分子骨架发生的超交换或双交换作用、与有机配体络合的磁性金属原子、配体间电荷转移以及非键轨道的对称性分布等。理论计算在理解与预测这些复杂的磁耦合机制中发挥了重要作用。近年来,该领域研究进展显著,在单分子磁体、一维磁性分子链和二维磁性有机框架中均取得一定进展。

单分子磁体是一类由分立、无磁性相互作用的纳米尺寸分子单元构成的磁性材料,每个分子都是一个独立的磁性功能单元。它们表现出独特的磁性双稳态和慢磁弛豫行为,在低温下能出现磁滞和磁化量子隧穿效应。单分子磁体的核心价值在于其作为信息存储单元的潜在应用价值。此外,由于单分子磁体自旋调控方面的研究进展^[44],其在量子计算、自旋电子器件以及生物传感、成像和治疗等领域也展现出良好的应用潜力。单

分子磁体主要包括基于过渡金属和稀土离子的类型。其中,稀土单分子磁体,特别是镝(Dy)基分子磁体,因稀土离子具有较大的磁矩和强磁各向异性,成为近年来研究的热点^[45]。当前的研究前沿着重于提升单分子磁体的性能并探索新功能。一方面,科学家通过配体场调控、分子结构设计(如设计线型双酰胺结构)等策略,显著提高了磁翻转能垒和磁滞温度。例如,最新研究已在镝的双(酰胺)—烯炔配合物中将软磁滞现象的温度提升至100 K^[46]。另一方面,研究也在探索单分子磁体除了磁性之外的其他物理性质。例如,同样在镝基单分子磁体中首次观察到的磁介电效应^[47],这为实现电场对单分子磁体磁性的调控提供了可能。

一维磁性分子链是由分子自由基或磁性金属离子通过分子桥联配体连接而成的准一维链状结构,是分子磁性材料的重要研究方向。与零维的单分子磁体相比,其核心特征在于链内由于 sp^2 杂化碳原子产生的离域 π 键,从而可能涌现出丰富的集体磁现象与独特的量子效应。研究重点在于精准的分子设计,通过选择特定的自旋载体和共轭桥联配体,实现对链内自旋间耦合强度与性质的调控,可产生铁磁或反铁磁耦合。这类材料不仅展现出单链磁体的慢磁弛豫行为,还常伴随有趣的物理性质,如自旋—Peierls相变、自旋阻挫以及电荷与自旋相互耦合产生的多功能性。近年来,研究人员在提高其阻塞温度、理解磁弛豫机制并探索磁性调控方式等方面取得了显著进展,包括近似一维海森堡链的一维反铁磁分子链的实现^[48]以及一维链磁性的开关调控^[49]等,展现了一维磁性分子链在自旋器件及量子计算方面的应用潜力。

二维分子基磁性材料主要包括二维磁性有机框架。其中的代表性材料为二维金属有机框架(Two-Dimensional Metal-Organic Frameworks, 2D-MOFs),是一类由金属离子与有机配体通过配位键结合形成的、具有磁性的单分子层材料。这类材料不仅具有结构可调、比表面积大的特点,还因其独特的金属—配体间磁交换机制而呈现出丰富的磁学性质,为自旋电子学和高密度信息存储提供了新材料平台。例如,具有铁磁基态的二维量子反常霍尔绝缘体被理论预言^[50]。此外,通过选用特定的过渡金属(如Ni)和有机配体(如六羟基苯, H_6HOB),可构建具有红宝石晶格的2D-MOFs,其中Ni-HOB材料表现出巨大的轨道选择性磁各向异性(163.54 meV/Ni),显著提升了材料的自旋弛豫障碍^[51]。这些进展凸显了磁性2D-MOFs在实现超高密度数据存储、低能耗自旋电子器件以及量子计算等方面的巨大应用潜力。除2D-MOFs外,由有机分子结合形成的共价有机框架和氢键有机框架同样展现出量子材料的潜

力^[52,53],有望成为碳基磁性材料的重要成员。

分子基磁性材料的优势在于其丰富的分子结构种类和多样化的调控方式。通过先进的量子化学计算和分子轨道理论,研究者可以“自下而上”地设计具有特定对称性和磁交换路径的分子构建单元,从而定向组装出具有新奇物态的材料。由于其丰富的化学组分和可调的对称性,分子基材料被认为是发现新磁序的宝库,在未来自旋输运和量子信息领域有望扮演关键角色。

2 现阶段前沿理论研究成果

2.1 新型磁性石墨烯纳米带的理论设计与实现

近年来,理论计算在新型磁性石墨烯纳米带的设计与实现中发挥了关键的引领作用。2025年,研究者们基于Lieb定理和拓扑分类理论,提出了一个普适性设计原理:通过在一侧锯齿边缘引入周期性苯环缺陷阵列,打破传统ZGNRs的结构对称性,可引发子晶格失衡与自旋对称性破缺,从而诱导出本征磁性^[54]。依据该原理设计的石墨烯纳米带因其两侧边缘结构迥异,被命名为Janus石墨烯纳米带(Janus Graphene Nanoribbon, JGNR)。

进一步理论分析表明,JGNR的磁基态随缺陷间距 m 的变化而发生连续演变,包括铁磁耦合、亚铁磁耦合以及反铁磁耦合。尤为重要的是,理论预言当 $m=2$ 时,拓扑缺陷边缘态被完全“淬灭”,从而得到一种磁序仅局域在单一边缘的铁磁基态。这一精确预测为实验合成目标材料提供了明确的指导。研究团队进一步通过密度泛函理论计算验证了上述预测。理论计算结果确认,JGNR的基态确为铁磁态,其费米能级附近的自旋极化能带发生显著劈裂,所得边缘态能带特征与实验扫描隧道谱观测结果高度吻合。计算的局域态密度图像也成功复现了实验中观察到的空间电荷分布,证实铁磁态仅存在于完整的锯齿边缘。此外,理论模型还考虑了衬底引起的电荷转移效应,证实该铁磁边缘态在真实实验环境下依然保持稳定。除上述工作外,西班牙的研究团队使用理论计算方法研究了应变和氢原子吸附对ZGNRs磁性的调控作用^[55]。研究发现,氢原子的磁性构型受边缘态强烈影响,与边缘呈反铁磁耦合。通过施加应变,存在缺陷的纳米带磁矩呈现整数量子化平台,这与能带结构变化(如半金属性或带隙打开)密切相关。这些发现为石墨烯纳米带的磁性调控及自旋电子学应用提供了新途径,彰显了理论计算在现代材料“按需设计”中的核心驱动作用,为碳基自旋电子器件的发展奠定了坚实的理论基础,同时也大大降低了试错成本。

2.2 有机交变磁性材料的理论设计

交变磁性材料因其可用于低功耗、高性能自旋电子器件而备受关注。作为一类新兴的无机材料磁性相,其在有机材料中的实现也逐步由理论预言走向理论设计。近期,一项理论研究首次在2D-MOFs中成功预测了交变磁性的存在,并据此确立了基于对称性的材料设计策略。基于此策略设计的材料呈现出液氮温度以上的磁有序转变温度,为低功耗、高性能自旋电子器件的研发提供了全新的材料平台。

研究人员着眼于结构丰富、可定制性强的2D-MOFs,理论设计了由钙、锶等轻元素与吡嗪分子构成的 $M(\text{pyz})_2$ 型2D-MOF半导体^[31]。研究发现,这些材料展现出典型的交变磁性特征,其能带自旋劈裂主要由晶体对称性破缺主导,而非传统的自旋—轨道耦合。模拟进一步表明,通过简单改变面内电场的方向,即可有效调控自旋电流的方向与形态,甚至在特定条件下可产生纯自旋流,实现高效电荷—自旋转换。该工作首次将交变磁性拓展至有机—无机杂化体系,证实了利用电场这一易控手段操控自旋的可行性。

在上述工作的基础上,研究人员进一步深入研究,基于晶格模型提出了一种普适性的二维有机交变磁性材料逆向设计策略,即挑选具有特定对称性和“非键轨道”的有机分子作为构建模块,通过合理的原子替换使其能与铬等磁性金属离子配位,从而“自下而上”地构建目标二维MOF^[33]。利用该方法设计的数种铬基MOF(如 $\text{Cr}(\text{diz})_2$)均被理论计算证实为交变磁体,其磁有序转变温度最高可达183 K,远超许多传统的无机二维磁体。机理分析揭示,该策略的成功关键在于非键轨道引导自旋密度精准定位于配体碳原子上,进而通过配体间强大的p-p轨道相互作用稳定了交变磁序。该系列工作不仅丰富了交变磁性材料家族,更重要的是提供了一条按需设计磁性材料的清晰路径。从实现电场调控到达成高温稳定,这些进展为利用分子级精准合成技术开发室温、超低功耗自旋逻辑与存储器件奠定了坚实的理论基础与材料基础。

2.3 化学方法调控有机材料磁性的理论方案设计

在探索自旋调控新机制方面,理论研究提出了基于可逆化学反应的磁性调控新范式。当前,有机材料的自旋调控主要依赖外场手段,而化学调控虽因其丰富的结构自由度备受关注,但多数化学修饰过程不可逆,限制了其应用前景。近期,理论研究人员提出了一种基于内酰胺—内酰亚胺互变异构的化学调控新策略,理论上实现了二维有机金属材料自旋态的可逆切换。该研究创新性地利用有机连接子中的内酰胺—内酰亚胺互变异

构反应,在由Cr—吡啶/联吡啶衍生物构成的2D-MOFs中,成功诱导了从反铁磁半导体向亚铁磁双极磁性半导体的可逆相变^[56]。理论计算表明,互变异构过程导致有机连接子的自旋态由单重态转变为双重态,进而通过直接交换作用改变金属节点间的磁耦合方式,最终实现磁序的转变,且未对2D-MOFs的整体结构造成明显破坏。进一步的研究揭示,在溶液环境中,相变能垒从1.73 eV显著降低至0.495 eV,表明该反应在接近室温条件下具备可行性。随着有机配体由内酰胺向内酰亚胺转变,材料的电子结构由普通半导体转变为自旋极化率高达100%的双极磁性半导体,其载流子自旋可通过栅压进行调控。该工作为发展低功耗、高密度的自旋电子器件提供了新思路,不仅拓展了化学手段在自旋调控中的应用前景,也为设计多功能、可编程的二维分子基磁性材料提供了理论依据与可行的材料平台。

2.4 碳基量子磁体的器件化探索

碳基量子磁体因其具备超高量子相干性、可调控电子结构以及广泛的结构设计自由度,在构建下一代高性能量子器件方面展现出卓越潜力。截至目前,碳基量子磁体的器件化依然处于起步阶段,主要聚焦于可控拓扑物态、相干态操作以及碳基量子比特原型的初步探索等问题上。其中,分子基磁性材料呈现较为显著的进展。理论计算在碳基量子磁体的器件设计方面发挥了重要作用。中国科学技术大学团队使用理论计算方法,提出了利用双极磁性分子在单分子器件中实现纯自旋电流的方法^[57]。通过温度梯度驱动的自旋塞贝克效应,并结合栅极电压调控分子能级与费米能级的相对位置,可使自旋向上与自旋向下的电流大小相等、方向相反,从而实现净电荷电流为零的纯自旋输运。该机制通过第一性原理计算在两种双极磁性分子体系中得到验证,为低功耗、高集成度的分子自旋电子器件设计提供了新思路。

2.5 机器学习方法在碳基量子磁体研究领域的应用

机器学习方法作为一件强有力的研究工具,正推动碳基量子磁体领域进入一个高效率设计与发现的阶段。目前机器学习方法在理论计算方面的应用主要包括三个方向。一是结构—性质预测,利用图神经网络、卷积神经网络等模型,精准预测碳基材料目标性质,实现虚拟筛选,为后续的理论计算研究奠定基础。二是逆向设计,借助生成对抗网络与变分自编码器,从目标性能出发生成新型碳基材料结构,推动定制化材料开发。韩国科研团队开发了基于大语言模型的金属有机框架研究用模型ChatMOF,可用于性质预测和材料逆向设计,形成从材料筛选到结构设计的闭环^[58]。但目前由于大语

言模型的精确度问题,更多是作为预研工具,具体课题仍需理论计算和实验探索的进一步研究。三是机器学习分子动力学模拟方法。与传统分子动力学方法仅能以经典力学尺度力场进行模拟相比,机器学习方法可以通过适当训练的模型,实现近似密度泛函理论精度的动力学模拟,从而突破传统力场限制,支持高精度的大尺度分子动力学模拟^[59]。这些方法共同推动了碳基量子磁体理论研究的进一步发展。

3 碳基量子磁性材料领域关键问题与挑战

3.1 碳基磁性材料的原子级精准设计

碳基材料中磁性的微观起源是该领域的核心科学问题之一。理解丰富多样的碳基磁性材料家族的磁交换机制、自旋分布与基态性质,离不开理论模型的支持。目前常用的密度泛函理论精度的模型受限于平均场近似,对库伦相互作用的描述依赖于半经验的Hubbard U模型,精度有限。在磁构型领域较为常用的海森堡模型对磁性的相变温度预言与实验结果间存在较大误差。因此,对碳基磁性材料实现第一性原理的原子级精准设计,需要发展超越平均场的精确理论模型。理论研究在此方面的核心任务,是构建能够准确描述碳骨架拓扑、缺陷与掺杂对电子结构影响的量子模型,从而揭示磁性产生的内在物理机制。通过对称性分析、拓扑分类与多体计算,理论能够系统阐明不同结构特征与宏观磁序之间的关联,并为实现磁性的定向设计提供普适性原理。此外,面对材料体系的复杂性,发展融合人工智能与多尺度模拟的理论框架,对于高效挖掘材料“基因”与宏观磁性之间的复杂映射关系、加速新型磁性碳基材料的理性发现至关重要。

3.2 碳基量子磁体的精准合成

实现碳基量子磁体原子级精度的可控制备,依赖于对合成路径与结构稳定性的深刻理解。理论研究在此环节的关键作用在于从热力学与动力学角度预先评估不同合成策略的可行性,模拟前驱体反应路径、能垒及最终产物的结构稳定性。理论模型能够揭示外场(如应力、电场)对低维磁体结构的调控机制,预测其在合成与后处理过程中可能发生的结构演化,从而为实验上规避不稳定构型、实现目标结构的精准构筑提供理论预见。另一方面,计算模拟方法能够基于理论模型计算实验可观测量,与实验结果交叉比对,从而进一步推动对碳基量子磁体的结构认识,以更好实现碳基量子磁体的精准合成^[60,61]。发展更大尺度、更高精度的计算模拟方法,是实现从分子单元到宏观结构跨尺度理论指导合成的必然方向。

3.3 碳基量子磁体的性质调控与器件设计探索

实现碳基量子磁体量子态的有效调控并推动其走向器件应用,面临多场耦合下动态控制与环境稳定性的双重挑战。理论研究在此方面的核心价值,在于构建能够模拟真实器件环境下自旋输运、退相干过程及外场响应行为的理论模型。通过计算电子结构与界面效应,理论可以预测自旋注入效率、磁各向异性以及电场/应力场对磁序的调控能力,为低功耗自旋器件的设计提供性能评估与优化方案。同时,理论模拟能够揭示环境因素导致磁性衰减的微观机制,从而指导稳定性增强策略的开发。面向未来量子信息技术,理论需进一步探索退相干机制并提出抑制方案,为维持长寿命自旋量子态提供原理性支撑。

3.4 理论模型与计算方法创新

面对上述复杂挑战,发展先进的理论与计算方法是取得突破的基石。当前,结合密度泛函理论、量子蒙特卡罗及动态平均场理论等多尺度计算方法,已能系统研究碳基磁体的基态电子结构与静态磁性。未来,亟需发展更高精度、更大尺度的计算方案,以精准描述复杂碳基系统中的动态自旋涨落、强关联效应及自旋—轨道耦合行为。超越传统的计算模拟,数据驱动的材料设计正展现出巨大潜力。利用人工智能与机器学习,可以高效挖掘材料结构特征与宏观磁性之间的复杂映射关系,将大范围的材料筛选整合为自动化、流程化的高通量筛选流程。这不仅能加速新型磁性碳基材料的发现,更能实现从反复试错到理论设计的范式转变,为最终实现碳基量子磁体的按需设计提供核心驱动力。

3.5 新型物性的发现与探索

自旋电子学的发展早期集中于铁磁材料,但其固有的杂散场和高速读写下的磁畴翻转问题限制了器件小型化和能耗的进一步降低。反铁磁材料因其宏观无净磁矩、抗干扰能力强和动力学速度快等优点,被视为有潜力的替代平台^[62]。然而,对传统的共线反铁磁体而言,其电子能带是自旋简并的,无法像铁磁体那样产生自旋极化电流,这限制了其应用。近年来,以交变磁体为代表的非常规磁性材料被理论预言并得到实验证实,为自旋电子学注入了新的活力^[63-67]。与传统反铁磁体不同,由于交变磁体自旋极化子晶格间平移和空间反演对称的破缺,其仅保留了旋转对称性,在保持宏观零净磁矩的同时,其电子能带表现出基于晶格对称性的显著自旋劈裂。除此以外,旋转对称性进一步破缺的完全补偿亚铁磁同样作为非常规磁性的一员被发现,其同时具备铁磁材料的自旋劈裂与反铁磁材料的无宏观磁矩,同样展现出自旋器件等多方面的应用前景^[67]。这一系列

研究发现不仅革新了对磁性的基本认识,还为寻找非常规磁性材料体系提供了设计指南。截至目前,此类非常规磁性材料仍处于初步发展阶段,实验证实的非常规磁性材料较为有限,交变磁性已有一些理论预言的碳基材料报道,而完全补偿亚铁磁的碳基实现尚未见报道。除此类非常规磁性外,目前位于理论研究前沿的非平衡磁性、含开放系统下的拓扑分类以及量子动力学仍缺乏具体材料体系下的研究。碳基材料由于其结构丰度和可调控性,有望成为相关理论前沿物性的实现平台^[68]。碳基磁性材料作为磁性材料家族的重要成员,在非常规磁性领域具有可观潜力。未来,探索具有优异性能的非常规磁性碳基材料将成为碳基磁性材料方面的重要课题。

4 展望

碳基量子磁体的研究正从材料探索与实验验证,逐步迈向通过理论先行指导实现功能按需设计的新阶段。面向未来,该领域的理论研究将在深度和广度上持续拓展,为解决关键科学问题、引领实验突破和最终实现器件应用提供核心驱动力。未来的理论研究有望在以下几个重点方向取得突破:

第一,发展多尺度、高性能的计算模拟方法与理论模型。当前,从Hückel分子轨道理论到密度泛函理论及超越密度泛函理论的计算方法,已为理解碳基量子磁体的电子结构、磁耦合机制奠定了基础。未来需致力于发展更高精度、更大尺度的计算方案,以精准描述大体系中的长程序、动态自旋涨落及自旋—轨道耦合行为等磁性相关物理现象。同时,发展更优的第一性原理理论模型,从而更好地描述强关联现象,为相关研究提供指导。此外,结合机器学习和高通量计算,构建从材料结构到磁性相关物性的高效映射关系,实现磁性材料的快速筛选与设计,能够显著加快新型碳基磁体的设计与开发。

第二,深入揭示磁有序与量子效应的微观起源与调控原理。尽管对称性分析等理论工具已成功预言了交变磁性等新颖磁态,但对于碳基材料中磁交换作用的微观路径、拓扑边缘态的稳定性以及量子相干性的维持机制等关键科学问题的理解仍需深化。理论工作需构建更精确的模型,阐明化学修饰、界面工程、外场等因素如何影响碳基磁性材料的自旋极化分布、磁各向异性和退相干过程,为实验上实现室温磁有序和长寿命自旋量子态提供明确的理论预言和调控策略。

第三,探索碳基量子磁体中的新奇物态与效应。碳材料丰富的化学多样性和可调的拓扑结构为发现新物态提供了广阔平台。理论研究可前瞻性地探索碳基体系中的拓扑磁性(如斯格明子、磁畴壁)、交变磁性的更

丰富表现形式以及可能出现的量子自旋液体态等。此外,理论设计还可在石墨烯摩尔超晶格、异质结等低维结构中探寻由库仑相互作用导致的关联绝缘态、超导态与磁有序的竞争与共存,为多场调控和新型量子器件设计开辟新路径。

第四,推动理论—实验—器件的一体化协同设计范式。未来的理论研究不能止步于对物性的解释,更应主动引领从材料到器件的全过程。这要求理论工作与表征技术深度融合,为实验观测提供直接可对比的理论谱图;同时,需加强面向器件的理论模拟,如自旋注入效率、输运特性、量子比特退相干机制等,为构建高性能碳基自旋电子学和量子信息器件提供可靠的理论蓝图和性能上限评估。

第五,强化理论与国家量子科技战略的对接。碳基量子磁体是量子科技的重要材料基础。理论研究应紧密围绕国家在量子计算、量子传感等领域的战略需求,聚焦于解决如高比特密度、高相干性、可扩展性等核心挑战中的关键科学问题。通过前瞻性的理论布局和深度学科交叉,为我国在量子材料与器件的原始创新和自主可控体系中占据主动并提供坚实的理论支撑。

总之,理论研究的深化与创新是推动碳基量子磁体领域发展的重要引擎。通过发展先进计算方法、揭示深层物理机制、预测新奇量子现象,并紧密结合实验验证与器件需求,理论研究将有力推动碳基量子磁体从基础科学前沿走向未来量子技术应用。

参 考 文 献

- [1] Wang Y, Chen Y, Bui HT, et al. An atomic-scale multi-qubit platform. *Science*, 2023, 382(6666): 87—92.
- [2] Zheng YQ, Li C, Xu CY, et al. Designer spin order in diradical nanographenes. *Nature Communications*, 2020, 11: 6076.
- [3] Biswas K, Soler D, Mishra S, et al. Steering large magnetic exchange coupling in nanographenes near the closed-shell to open-shell transition. *Journal of the American Chemical Society*, 2023, 145(5): 2968—2974.
- [4] Luo H, Liu JZ. Non-alternant nanographenes bearing N-doped non-hexagonal pairs: Synthesis, structural analysis and photophysical properties. *Angewandte Chemie International Edition*, 2024, 63(42): e202410759.
- [5] Niu WH, Sopp S, Lodi A, et al. Exceptionally clean single-electron transistors from solutions of molecular graphene nanoribbons. *Nature Materials*, 2023, 22(2): 180—185.
- [6] Schwöbel J, Fu YS, Brede J, et al. Real-space observation of spin-split molecular orbitals of adsorbed single-molecule magnets. *Nature Communications*, 2012, 3: 953.
- [7] Wang XY, Richter M, He YQ, et al. Exploration of pyrazine-embedded antiaromatic polycyclic hydrocarbons generated by solution and on-surface azomethine ylide homocoupling. *Nature Communications*, 2017, 8: 1948.
- [8] Imran M, Yang L, Zhang JJ, et al. A persistent concealed non-Kekulé nanographene: Synthesis and *in situ* characterization. *Organic Chemistry Frontiers*, 2025, 12(5): 1432—1437.
- [9] Sun YY, Zheng YP, Pan HZ, et al. Magnetism of graphene quantum dots. *npj Quantum Materials*, 2017, 2: 5.
- [10] Osman W, Abdelsalam H, Ali M, et al. Electronic and magnetic properties of graphene quantum dots doped with alkali metals. *Journal of Materials Research and Technology*, 2021, 11: 1517—1533.
- [11] Ozaki T, Nishio K, Weng HM, et al. Dual spin filter effect in a zigzag graphene nanoribbon. *Physical Review B*, 2010, 81(7): 075422.
- [12] Ortiz R, Lado JL, Melle-Franco M, et al. Engineering spin exchange in nonbipartite graphene zigzag edges. *Physical Review B*, 2016, 94(9): 094414.
- [13] Friedrich N, Brandimarte P, Li JC, et al. Magnetism of topological boundary states induced by boron substitution in graphene nanoribbons. *Physical Review Letters*, 2020, 125(14): 146801.
- [14] Keerthi A, Sánchez-Sánchez C, Deniz O, et al. On-surface synthesis of a chiral graphene nanoribbon with mixed edge structure. *Chemistry—An Asian Journal*, 2020, 15(22): 3807—3811.
- [15] Pawlak R, Liu XS, Ninova S, et al. Bottom-up synthesis of nitrogen-doped porous graphene nanoribbons. *Journal of the American Chemical Society*, 2020, 142(29): 12568—12573.
- [16] Blackwell RE, Zhao FZ, Brooks E, et al. Spin splitting of dopant edge state in magnetic zigzag graphene nanoribbons. *Nature*, 2021, 600(7890): 647—652.
- [17] Koen Houtsma RS, de la Rie J, Stöhr M. Atomically precise graphene nanoribbons: Interplay of structural and electronic properties. *Chemical Society Reviews*, 2021, 50(11): 6541—6568.
- [18] Kumar S, Pratap S, Kumar V, et al. Electronic, transport, magnetic, and optical properties of graphene nanoribbons and their optical sensing applications: A comprehensive review. *Luminescence*, 2023, 38(7): 909—953.
- [19] Zhang PN, Li XL, Dong JT, et al. π -magnetism and spin-dependent transport in boron pair doped armchair graphene nanoribbons. *Applied Physics Letters*, 2022, 120(13): 132406.
- [20] Song Y, Du SX, Liu F, et al. Ferromagnetic boundary states in the hydrogenated graphene/nickel moiré superlattice. *Small*, 2025, 21(14): 2411646.
- [21] Li R, Sun HJ, Zhang C, et al. Graphdiyne doped with transition metal as ferromagnetic semiconductor. *Carbon*, 2022, 188: 25—33.
- [22] Gallo M, Favila A, Glossman-Mitnik D. DFT studies of functionalized carbon nanotubes and fullerenes as nanovectors for drug delivery of antitubercular compounds. *Chemical Physics Letters*, 2007, 447(1/2/3): 105—109.
- [23] Izadi-Najafabadi A, Yasuda S, Kobashi K, et al. Extracting the full potential of single-walled carbon nanotubes as durable supercapacitor electrodes operable at 4 V with high power and energy density. *Advanced Materials*, 2010, 22(35): E235—E241.
- [24] Kuemmeth F, Churchill HOH, Herring PK, et al. Carbon nanotubes for coherent spintronics. *Materials Today*, 2010, 13(3): 18—26.
- [25] Klinovaja J, Loss D. RKKY interaction in carbon nanotubes and graphene nanoribbons. *Physical Review B*, 2013, 87(4): 045422.

- [26] Li JC, Hou PX, Liu C. Heteroatom-doped carbon nanotube and graphene-based electrocatalysts for oxygen reduction reaction. *Small*, 2017, 13(45): 1702002.
- [27] Villalva J, Develioglu A, Montenegro-Pohlhammer N, et al. Spin-state-dependent electrical conductivity in single-walled carbon nanotubes encapsulating spin-crossover molecules. *Nature Communications*, 2021, 12: 1578.
- [28] Tan FX, Yang LY, Yang XF, et al. Thermoelectric transport properties of magnetic carbon-based organic chains. *Chemical Physics*, 2020, 528: 110524.
- [29] Zhang YX, Guo LD, Zhu XW, et al. The application of organic semiconductor materials in spintronics. *Frontiers in Chemistry*, 2020, 8: 589207.
- [30] Zhang XM, He TL, Liu Y, et al. Magnetic real Chern insulator in 2D metal-organic frameworks. *Nano Letters*, 2023, 23(16): 7358—7363.
- [31] Che YX, Lv HF, Wu XJ, et al. Realizing altermagnetism in two-dimensional metal-organic framework semiconductors with electric-field-controlled anisotropic spin current. *Chemical Science*, 2024, 15(34): 13853—13863.
- [32] Kawamura T, Yoshimi K, Hashimoto K, et al. Compensated ferromagnets with colossal spin splitting in organic compounds. *Physical Review Letters*, 2024, 132(15): 156502.
- [33] Che YX, Chen YL, Liu X, et al. Inverse design of 2D altermagnetic metal-organic framework monolayers from Hückel theory of nonbonding molecular orbitals. *JACS Au*, 2025, 5(1): 381—387.
- [34] Gatteschi D, Sessoli R. Quantum tunneling of magnetization and related phenomena in molecular materials. *Angewandte Chemie International Edition*, 2003, 42(3): 268—297.
- [35] Bogani L, Wernsdorfer W. Molecular spintronics using single-molecule magnets. *Nature Materials*, 2008, 7(3): 179—186.
- [36] Jiang SD, Wang BW, Su G, et al. A mononuclear dysprosium complex featuring single-molecule-magnet behavior. *Angewandte Chemie International Edition*, 2010, 49(41): 7448—7451.
- [37] Yao XN, Du JZ, Zhang YQ, et al. Two-coordinate co(II) imido complexes as outstanding single-molecule magnets. *Journal of the American Chemical Society*, 2017, 139(1): 373—380.
- [38] Son YW, Cohen ML, Louie SG. Half-metallic graphene nanoribbons. *Nature*, 2006, 444(7117): 347—349.
- [39] Wang XY, Urgel JI, Barin GB, et al. Bottom-up synthesis of heteroatom-doped chiral graphene nanoribbons. *Journal of the American Chemical Society*, 2018, 140(29): 9104—9107.
- [40] Pan JB, Du SX, Zhang YY, et al. Ferromagnetism and perfect spin filtering in transition-metal-doped graphyne nanoribbons. *Physical Review B*, 2015, 92(20): 205429.
- [41] Pan LD, Song BQ, Sun JT, et al. The origin of half-metallicity in conjugated electron systems—a study on transition-metal-doped graphyne. *Journal of Physics: Condensed Matter*, 2013, 25(50): 505502.
- [42] Xin JP, Hu ZQ, Yao YR, et al. Short didysprosium covalent bond enables high magnetization blocking temperature of a direct 4f–4f coupled dinuclear single-molecule magnet. *Journal of the American Chemical Society*, 2024, 146(26): 17600—17605.
- [43] Hu ZQ, Wang YY, Ullah A, et al. High-temperature magnetic blocking in a monometallic dysprosium azafullerene single-molecule magnet. *Chem*, 2023, 9(12): 3613—3622.
- [44] Karan S, Li N, Zhang YJ, et al. Spin manipulation by creation of single-molecule radical cations. *Physical Review Letters*, 2016, 116(2): 027201.
- [45] Zhang QH, Jiang HF, Wu DZ, et al. Modulating single-molecule magnet behaviors and photodynamic antibacterial performance of DyIII clusters *via* ligand regulation. *Materials Today Chemistry*, 2025, 49: 103056.
- [46] Emerson-King J, Gransbury GK, Atkinson BE, et al. Soft magnetic hysteresis in a dysprosium amide-alkene complex up to 100 kelvin. *Nature*, 2025, 643(8070): 125—129.
- [47] Wang YX, Ma Y, Chai YS, et al. Observation of magnetodielectric effect in a dysprosium-based single-molecule magnet. *Journal of the American Chemical Society*, 2018, 140(25): 7795—7798.
- [48] Wang WQ, Chen C, Shu C, et al. *S*=1 tetraazacyclophane diradical dication with robust stability: A case of low-temperature one-dimensional antiferromagnetic chain. *Journal of the American Chemical Society*, 2018, 140(25): 7820—7826.
- [49] Kurihara T, Watanabe H, Nakajima M, et al. Macroscopic magnetization control by symmetry breaking of photoinduced spin reorientation with intense terahertz magnetic near field. *Physical Review Letters*, 2018, 120(10): 107202.
- [50] Gao YX, Zhang YY, Sun JT, et al. Quantum anomalous Hall effect in two-dimensional Cu-dicyanobenzene coloring-triangle lattice. *Nano Research*, 2020, 13(6): 1571—1575.
- [51] Zhao B, Xing JP, Liu QX, et al. Orbital selective large magnetic anisotropy, valley polarization, and antiferromagnetic Dirac-Mott insulators in 2D metal-organic frameworks with a ruby lattice. *Advanced Functional Materials*, 2026, 36(11): e15887.
- [52] Pan MH, Zhang X, Zhou YN, et al. Growth of mesoscale ordered two-dimensional hydrogen-bond organic framework with the observation of flat band. *Physical Review Letters*, 2023, 130(3): 036203.
- [53] Liu LW, Yang K, Jiang YH, et al. Reversible single spin control of individual magnetic molecule by hydrogen atom adsorption. *Scientific Reports*, 2013, 3: 1210.
- [54] Song ST, Teng Y, Tang WC, et al. Janus graphene nanoribbons with localized states on a single zigzag edge. *Nature*, 2025, 637(8046): 580—586.
- [55] Moles P, Santos H, Dominguez-Adame F, et al. Tuning magnetism in graphene nanoribbons *via* strain and adatoms. *Physical Review Research*, 2025, 7(3): 033255.
- [56] Li JY, Li XX, Yang JL. Chemically controlled reversible magnetic phase transition in two-dimensional organometallic lattices. *Nano Letters*, 2023, 23(19): 9126—9132.
- [57] Hu YJ, Liu SS, Huang J, et al. Gate-tunable spin seebeck effect and pure spin current generation in molecular junctions based on bipolar magnetic molecules. *Nano Letters*, 2023, 23(17): 7890—7896.
- [58] Kang Y, Kim J. ChatMOF: An artificial intelligence system for predicting and generating metal-organic frameworks using large language models. *Nature Communications*, 2024, 15: 4705.
- [59] Wang H, Zhang LF, Han JQ, et al. DeepPMD-kit: A deep learning package for many-body potential energy representation and molecular dynamics. *Computer Physics Communications*, 2018, 228: 178—184.
- [60] Ye LZ, Zheng X, Xu X. Theory of electron spin resonance spectroscopy in scanning tunneling microscopy. *Physical Review Letters*, 2024, 133

- (17);176201.
- [61] Zhu Y, Xue RJ, Ren H, et al. Reconstructing pristine molecular orbitals from scanning tunneling microscope images via artificial intelligence approaches. *JACS Au*, 2025, 5(7):3163—3170.
- [62] Jungwirth T, Marti X, Wadley P, et al. Antiferromagnetic spintronics. *Nature Nanotechnology*, 2016, 11(3):231—241.
- [63] Šmejkal L, Sinova J, Jungwirth T. Emerging research landscape of altermagnetism. *Physical Review X*, 2022, 12(4):040501.
- [64] Bai H, Zhang YC, Zhou YJ, et al. Efficient spin-to-charge conversion via altermagnetic spin splitting effect in antiferromagnet RuO₂. *Physical Review Letters*, 2023, 130(21):216701.
- [65] Krempaský J, Šmejkal L, D'Souza SW, et al. Altermagnetic lifting of Kramers spin degeneracy. *Nature*, 2024, 626(7999):517—522.
- [66] Reimers S, Odenbreit L, Šmejkal L, et al. Direct observation of altermagnetic band splitting in CrSb thin films. *Nature Communications*, 2024, 15:2116.
- [67] Liu YC, Guo SD, Li YP, et al. Two-dimensional fully compensated ferrimagnetism. *Physical Review Letters*, 2025, 134(11):116703.
- [68] Rao ZJ, Meng CH, Han YC, et al. Braiding reflectionless states in non-Hermitian magnonics. *Nature Physics*, 2024, 20(12):1904—1911.

Carbon-based Quantum Magnets for Spintronics and Quantum Information: A Review on Theoretic Studies

Yiyang Yin^{1, 2} Lizhi Zhang^{2*} Shixuan Du^{1*}

1. *Institutes of Physics, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100190, China*

2. *National Center for Nanoscience and Technology, Beijing 100190, China*

Abstract Carbon-based quantum magnets are a key class of materials in the field of spintronics and quantum technology. They exhibit significant potential for next-generation low-power spintronic devices and quantum information processing, owing to their weak spin-orbit coupling, long coherence times, and tunable magnetic properties. However, critical challenges remain in understanding the origin of magnetism, achieving precise synthesis and control, ensuring quantum state stability, and constructing accurate theoretical models. To address these challenges, the National Natural Science Foundation of China organized the 417th “Shuangqing Forum” in July 2025, which aimed to define key scientific issues and outline future research directions. This forum focused on topics such as precise spin-state manipulation, maintaining quantum coherence, and the surface/interface science governing the evolution of multi-domain states under coupled external fields. Based on the forum consensus, this review systematically summarizes the current research status, key scientific topics, and recent advances in the theoretical understanding of carbon-based quantum magnets, including novel graphene nanoribbons and altermagnetic metal-organic frameworks. It also highlights the crucial role of multi-scale simulations and artificial intelligence-assisted design in advancing the theoretical prediction and functional realization of these materials, thereby providing a theoretical reference and guidance for the future development of this field.

Keywords magnetic materials; carbon-based; quantum computation; spintronics; theoretical calculations

杜世萱 中国科学院物理研究所研究员, 博士生导师。中国化学会表面物理化学专业委员会副主任。长期从事表面分子的选择性组装、活化及低维材料性能的理论 and 计算模拟研究。主持国家自然科学基金青年科学基金项目(A类)、国家重点研发计划项目等。获中国青年女科学家奖、“谢希德”物理奖、北京市科学技术奖一等奖等奖项。

张礼智 国家纳米科学中心研究员, 博士生导师。主要从事分子量子材料结构、物性与生长机理的理论 and 计算研究。在国际学术期刊和重要国际会议上发表学术论文70余篇, 文章累计被引用4 000余次, *H-index*=27。

殷翼扬 国家纳米科学中心特别研究助理。主要从事低维有机材料的结构设计与生长模拟研究。

(责任编辑 贾祖冰 张强)

* Corresponding Authors, Email: sxdu@iphy.ac.cn; zhanglz@nanoctr.cn