

专题: 关联电子材料与散射谱学

## 铁砷化物超导体的自旋激发谱\*

李泽众<sup>1)2)</sup> 洪文山<sup>1)</sup> 谢涛<sup>3)</sup> 刘畅<sup>1)</sup> 罗会仟<sup>1)†</sup>

1) (中国科学院物理研究所, 北京 100190)

2) (中国科学院大学, 北京 100049)

3) (中山大学物理学院, 广州 510275)

(2024年11月1日收到; 2024年11月20日收到修改稿)

铁基超导体的多结构体系和丰富的磁性物理为理解非常规超导微观机理提供了广阔的平台, 其中自旋涨落被认为是超导配对的最可能媒介. 本文以铁砷化物超导体为例, 系统总结了铁基超导体自旋激发谱的非弹性中子散射研究结果, 并探讨了相关的普适规律; 重点介绍了铁砷化物超导体中低能自旋激发与超导电性的直接联系, 即中子自旋共振模的行为, 以及高能自旋激发谱的色散关系、强度分布、总体磁矩等特征, 并充分比较了与铜氧化物高温超导体的异同.

**关键词:** 铁基超导体, 高温超导, 非弹性中子散射, 自旋激发谱, 自旋涨落**PACS:** 74.70.Xa, 75.30.Gw, 78.70.Nx, 75.40.Gb**DOI:** 10.7498/aps.74.20241534**CSTR:** 32037.14.aps.74.20241534

## 1 引言

作为典型的关联电子材料, 非常规超导体涉及丰富的关联量子物态, 是凝聚态物理基础前沿领域的重要研究对象<sup>[1-3]</sup>. 常规超导体可基于声子为媒介的电子配对相干凝聚的BCS理论来描述, 其临界温度( $T_c$ )甚至能借助第一性原理计算来准确预测<sup>[4]</sup>. 尽管常压下常规超导体的 $T_c$ 难以逾越40 K的麦克米兰极限, 借助极端高压环境, 金属氢化物超导体的 $T_c$ 已经逐渐逼近室温<sup>[5-11]</sup>. 然而, 由于非常规超导电性涉及更加复杂的量子关联多体物理, 传统的基于电子-声子耦合的BCS理论已基本失效, 非常规超导材料及其临界参数几乎无法从理论上准确预测, 其微观机理的研究往往是由实验观测所驱动<sup>[12]</sup>. 目前发现的典型非常规超导材料有: 重费米子超导体、铜氧化物超导体、铁砷化物超导体、铁硒化物超导体<sup>[1,13-18]</sup>, 以及近十余年来发现的铬基、锰基、镍基等过渡金属化合物超导体<sup>[19-28]</sup>. 其中铜基和铁基超导体的 $T_c$ 可以在常压下突破40 K, 也被称为高温超导体<sup>[3]</sup>. 近年来, 随着镍氧化物超导家族的不断壮大, 其 $T_c$ 也能在高压下达到80 K以上, 且其宏观和微观物性更接近铜氧化物材料, 镍基超导体被认为是新一类非常规超导体或高温超导体<sup>[23-32]</sup>. 铁基超导体是家族成员最丰富、晶体结构类型最多、磁构型最复杂的非常规超导体<sup>[33]</sup>, 一方面它展现出诸多类似铜氧化物超导体的性质, 例如反铁磁竞争序、强自旋涨落、电子向列相等<sup>[33-37]</sup>; 另一方面它的母体通常具有金属导电性, 且电子关联强度适中, 意味着借助第一性原理计算可以较为准确地获得其电子能带结构、费米面乃至输运性质等信息<sup>[38]</sup>. 因此, 铁基超导体可能是非常规超导微观机理研究的重要突破口, 特别是借助其庞大家族成员的优势, 可以在多个不同体

体、铁硒化物超导体<sup>[1,13-18]</sup>, 以及近十余年来发现的铬基、锰基、镍基等过渡金属化合物超导体<sup>[19-28]</sup>. 其中铜基和铁基超导体的 $T_c$ 可以在常压下突破40 K, 也被称为高温超导体<sup>[3]</sup>. 近年来, 随着镍氧化物超导家族的不断壮大, 其 $T_c$ 也能在高压下达到80 K以上, 且其宏观和微观物性更接近铜氧化物材料, 镍基超导体被认为是新一类非常规超导体或高温超导体<sup>[23-32]</sup>. 铁基超导体是家族成员最丰富、晶体结构类型最多、磁构型最复杂的非常规超导体<sup>[33]</sup>, 一方面它展现出诸多类似铜氧化物超导体的性质, 例如反铁磁竞争序、强自旋涨落、电子向列相等<sup>[33-37]</sup>; 另一方面它的母体通常具有金属导电性, 且电子关联强度适中, 意味着借助第一性原理计算可以较为准确地获得其电子能带结构、费米面乃至输运性质等信息<sup>[38]</sup>. 因此, 铁基超导体可能是非常规超导微观机理研究的重要突破口, 特别是借助其庞大家族成员的优势, 可以在多个不同体

\* 国家重点研发计划(批准号: 2023YFA1406100, 2018YFA0704200)和中国科学院战略性先导科技专项(B类)(批准号: XDB25000000, XDB33000000, GJTD-2020-01)资助的课题.

† 通信作者. E-mail: hq Luo@iphy.ac.cn

系中检验相关规律的普适性, 从而厘清关键因素, 建立统一的物理图像<sup>[18]</sup>.

虽然传统 BCS 理论并不适用于非常规超导体, 但电子配对、相干、凝聚的基本物理图像仍然成立, 即非常规超导电性的载体依旧是库珀电子对<sup>[1]</sup>. 研究非常规超导机理的核心在于理解电子配对的起源, 包括电子配对的媒介、配对的能隙函数和相干凝聚的驱动力等三大要素. 与铜氧化物及重费米子超导体一样, 铁基超导电性的出现往往与磁性相互作用密切相关, 自旋涨落也被认为是非常规超导配对的最可能媒介<sup>[34-40]</sup>. 部分铁基超导体母体为反铁磁金属, 在掺杂或压力作用下, 长程反铁磁序不断被抑制, 或转化为其他磁构型, 或蜕变成短程磁有序. 随着超导态的出现并增强, 静态磁有序在最佳掺杂点附近最终消失, 但动态自旋涨落在相图的绝大部分区域依旧存在, 且整体强度与母体的自旋波相当<sup>[34]</sup>; 部分铁基超导体表现为化学计量比超导, 无需引入掺杂或压力就可以出现超导电性, 虽然静态磁有序并不存在, 但动态自旋涨落依旧很强, 在特定掺杂情形下静态磁有序也可能会重新出现<sup>[41-50]</sup>. 无论是否具有磁有序态, 对于绝大部分铁基超导体来说, 强自旋涨落总是与超导电性共生<sup>[33-38]</sup>. 特别是进入超导态之后, 其自旋激发谱的低能部分会出现中子自旋共振模——在特定的能量和动量位置出现自旋激发的增强, 且表现为超导序参量行为, 这被认为是自旋涨落参与超导配对的核心证据<sup>[34]</sup>. 需要强调的是, 铁基超导体中磁性相互作用来自于 Fe 的局域磁矩和费米面附近巡游电子的贡献, 这种局域-巡游双重属性结合多带情形下的复杂自旋-轨道耦合导致它们的磁结构在不同体系中变化多端, 但不同体系的自旋激发谱仍存在许多共性<sup>[38]</sup>.

本文系统总结了利用非弹性中子散射研究铁基超导体自旋激发谱得到的一些基本规律, 并探讨其与非常规超导电性的关系. 由于篇幅所限, 本文主要关注铁砷化物超导体, 主要涉及材料体系有 122 体系、112 体系、111 体系、1144 体系、12442 体系、10-3-8 体系等. 其他体系如 1111 体系、22241 体系、10-4-8 体系等, 目前已发表的研究结果较少, 仅在一些普适规律的讨论中加以提及. 内容如下: 首先, 简要介绍铁砷化物超导体的基本磁结构、磁性相互作用组成及自旋激发的动量分布; 然后, 讲述低能自旋激发与超导电性的关系, 特别是中子自

旋共振模的典型特征; 继而, 详细介绍自旋激发谱的色散关系, 并横向对比不同材料体系自旋激发强度及其带宽; 最后, 对铁砷化物的自旋激发谱规律进行总结归纳, 讨论与铜氧化物的区别, 并展望未来仍待解决的科学问题.

## 2 磁性相互作用及自旋激发的动量分布

铁砷化物超导体的典型结构体系有: 1111 型 (如 LaFeAsO)<sup>[51-53]</sup>、122 型 (如 BaFe<sub>2</sub>As<sub>2</sub>)<sup>[54-57]</sup>、112 型 (如 CaFeAs<sub>2</sub>)<sup>[58-62]</sup>、1144 型 (如 CaKFe<sub>4</sub>As<sub>4</sub>, 可视为 CaFe<sub>2</sub>As<sub>2</sub> 和 KFe<sub>2</sub>As<sub>2</sub> 的交错堆垛)<sup>[41-43]</sup>、12442 型 (如 KCa<sub>2</sub>Fe<sub>4</sub>As<sub>4</sub>F<sub>2</sub>, 可视为 KFe<sub>2</sub>As<sub>2</sub> 和 CaFeAsF 的交错堆垛; 或 CsNd<sub>2</sub>Fe<sub>4</sub>As<sub>4</sub>O<sub>2</sub>, 可视为 CsFe<sub>2</sub>As<sub>2</sub> 和 NdFeAsO 的交错堆垛)<sup>[44-50]</sup>、22241 型 (如 Ba<sub>2</sub>Ti<sub>2</sub>Fe<sub>2</sub>As<sub>4</sub>O, 可视为 BaFe<sub>2</sub>As<sub>2</sub> 和 BaTi<sub>2</sub>As<sub>2</sub>O 的交错堆垛)<sup>[49,63]</sup>、10-3-8 型 (如 Ca<sub>10</sub>(Pt<sub>3</sub>As<sub>8</sub>)(Fe<sub>2</sub>As<sub>2</sub>)<sub>5</sub>)<sup>[60,64-66]</sup> 和 10-4-8 型 (如 Ca<sub>10</sub>(Pt<sub>4</sub>As<sub>8</sub>)(Fe<sub>2</sub>As<sub>2</sub>)<sub>5</sub>)<sup>[64,67,68]</sup> 等. 除了 112 型和 10-3-8 型材料在低温下为对称性较差的三斜相之外<sup>[61,64]</sup>, 其他体系均在低温下为正交相或四方相, 并在高温可能存在正交-四方的结构相变<sup>[33]</sup>. 但是, 如果只关注 Fe 离子的子晶格, 也就是体系的磁性晶胞, 就会发现铁砷化物中 Fe 离子基本上是正交/四方晶格<sup>[35]</sup>. 在诸如 122, 1111, 111 等体系中低温正交晶格的 *a* 轴和 *b* 轴的差异并不大 (均大约为 5.6 Å, 1 Å = 10<sup>-10</sup> m)<sup>[51-57]</sup>, 在 112 体系中 *ab* 轴键角  $\gamma = 89.92^\circ$ <sup>[60-62]</sup>, 而在 10-3-8 体系中 Fe 的子晶格与 122 体系几乎类似<sup>[60,64-66]</sup>, 如此小的结构差异在需要大量样品的非弹性中子散射实验中是无法分辨的. 所以在铁砷化物的自旋激发谱研究中, 考虑到最近邻 Fe 离子为反铁磁关联, 大部分情况下可基于 Fe-Fe 较大的四方格子磁胞来讨论相关物理 (参照 122 体系母体的磁胞定义  $a_M, b_M, c_M$ , 以及  $\alpha = \beta = \gamma = 90^\circ$ , 其中面内磁晶格参数  $a_M$  为高温四方相晶格参数 *a* 的  $\sqrt{2}$  倍), 不同体系的磁晶格参数会略有差异 (见图 1(a))<sup>[35,38]</sup>. 在本文的所有讨论中均采纳该磁胞的定义.

尽管铁砷化物超导体的晶体结构有多种类型, 因其 Fe 磁胞基本类似, 它们呈现出的静态磁有序可统一用两分量的波矢来描述:  $\mathbf{m}(\mathbf{R}) = M_1 \cos(\mathbf{Q}_1 \cdot \mathbf{R}) + M_2 \cos(\mathbf{Q}_2 \cdot \mathbf{R})$ , 其中  $M_{1,2}$  是正交波矢  $\mathbf{Q}_{1,2}$  的磁矩分量 ( $\mathbf{Q}_1 = (\pi, 0)$ ,  $\mathbf{Q}_2 = (0, \pi)$ )<sup>[69]</sup>.

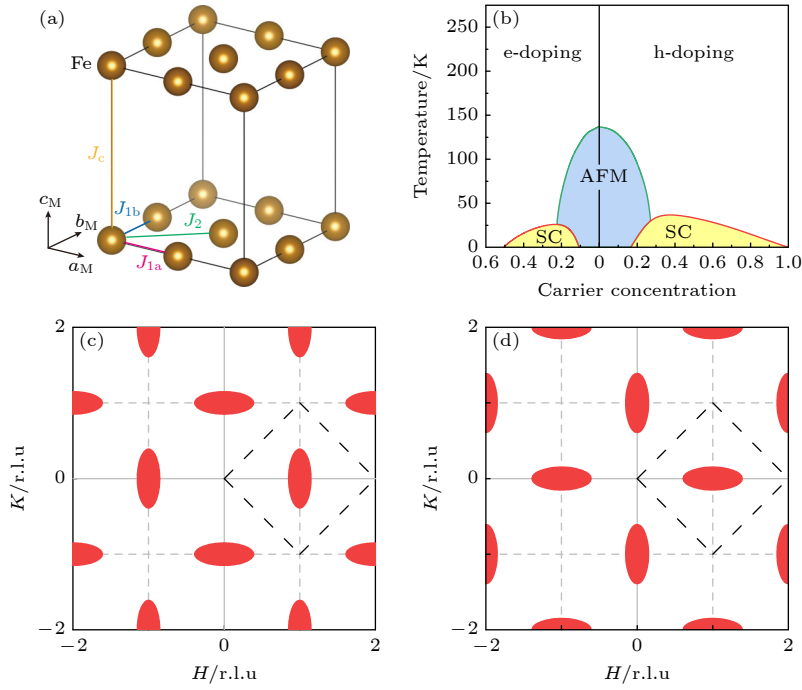


图 1 (a) Fe 离子构成的磁晶胞及交换耦合能; (b) 简明电子态相图; (c) 电子型掺杂体系的低能自旋激发的动量分布; (d) 空穴型掺杂体系的低能自旋激发的动量分布, 其中虚线为第一布里渊区

Fig. 1. (a) Magnetic unit cell and exchange couplings; (b) illustration of phase diagram; (c) low-energy spin excitations in electron-doped compounds, (d) low-energy spin excitations in hole-doped compounds, the dashed box is the first Brillouin zone.

铁砷化物超导体中两分量磁矩大小和方向的不同组合有 3 种结果 [34,35]: 1)  $M_1 \neq 0$ ,  $M_2 = 0$ , 即磁矩在面内沿  $Q_1$  方向为反铁磁排列、 $Q_2$  方向为铁磁排列的共线型反铁磁结构 (具有  $C_2$  对称性), 主要在正交相的 1111, 111, 122, 112 等体系中出现 [35,52], 其中 112 体系磁矩方向与  $Q_1$  波矢呈  $45^\circ$  夹角 [61], 其他体系磁矩方向与  $Q_1$  波矢一致 [34]; 2)  $|M_1| = |M_2| \neq 0$ ,  $M_1 // M_2$ , 此时两分量磁矩大小相同、方向相反, 且沿着  $c_M$  方向, 这意味着在  $Q_1 + Q_2$  点的磁矩会互相抵消, 体系在磁有序下任保持晶格的  $C_4$  对称性, 主要在空穴型四方相的 122 体系接近最佳掺杂点附近区域出现 [70-73]; 3)  $|M_1| = |M_2| \neq 0$ ,  $M_1 \perp M_2$ , 此时两分量磁矩大小相同、方向垂直, 且保持在  $ab$  面内, 形成了非共线但共面的自旋涡旋序, 其中磁矩指向或反向四方格子的中心点, 晶格和磁构型都保持  $C_4$  对称性, 主要在电子掺杂后的四方相 1144 体系中出现 [43,74]. 根据金兹堡-朗道的相变唯象理论, 这三类磁有序结构在平均场相图中互为邻居, 至于哪一个成为基态则由相关的朗道参量及具体的自旋-轨道耦合方式所决定 [69]. 无论是以上何种磁构型, 磁布拉格峰都将在  $Q_1 = (\pi, 0)$  出现 (对应高温四方相的晶格波矢  $Q = (\frac{\pi}{2}, \frac{\pi}{2})$ ),

在  $C_4$  反铁磁序和自旋涡旋序中, 则会同时出现在  $Q_1 = (\pi, 0)$  和  $Q_2 = (0, \pi)$  [34,35]. 即便是在具有四方正交相变的体系中, 因为低温下孪晶的存在, 实际上磁峰和自旋激发信号也是在  $Q_1$  和  $Q_2$  附近均能观测到, 仅在退孪晶样品中出现在  $Q_1$ . 在铁砷化物材料中, 有一些体系无需掺杂空穴/电子, 在化学计量比下即呈现出超导电性, 且天然不存在长程磁有序, 例如 1144 体系、12442 体系、22241 体系等. 它们可视为是其他简单体系 (如 122 体系和 1111 体系) 的复合结构, 其中 1144 体系在掺杂电子后, 会复现出自旋涡旋序. 并且, 这些体系的自旋激发仍然由 Fe 磁胞所贡献, 自旋激发出现的波矢位置和有长程磁有序的体系并无区别.

在具有长程磁有序的铁砷化物材料中, 理论上其自旋波色散可大致用局域 Heisenberg 模型来描述, 主要的有效磁交换耦合能分别是面内的最近邻相互作用  $J_{1a}$ ,  $J_{1b}$ , 次近邻相互作用  $J_2$  和层间的相互作用  $J_c$  (图 1(a)) [38]. 目前已测量得到的  $AFe_2As_2$  ( $A = Ca, Sr, Ba$ ) 自旋波拟合结果表明  $J_2$  均为 20 meV 左右, 而  $J_{1a}$  和  $J_{1b}$  之间则总是存在很大的差异, 即面内磁相互作用是各向异性的, 对应着径向 (如  $[H, 0]$  方向) 和横向 (如  $[1, K]$  方向)



的自旋激发色散行为有所相同<sup>[34-38]</sup>. 在晶格为正交相 ( $a_M \neq b_M$ ) 的 122 体系尚可理解  $J_{1a}$  和  $J_{1b}$  的差异, 但是在许多晶格/磁胞保持四方相 ( $a_M = b_M$ ) 的体系, 如 1144 和 12442 体系, 其径向和横向的自旋激发色散依旧存在明显差异<sup>[75-78]</sup>, 说明纯局域磁矩模型并不能很好地理解铁砷化物的自旋激发谱. 的确, 通过对几乎完全退孪晶的  $\text{BaFe}_2\text{As}_2$  的自旋波进行细致分析可以发现局域 Heisenberg 模型基本失效, 相反, 采用多轨道下的 Hubbard 模型 (即充分考虑电子关联效应的巡游模型) 能更准确地定量描述其色散关系、谱权重分布以及自旋向列涨落行为<sup>[79]</sup>. 因此, 在理解铁砷化物自旋激发谱时, 从巡游磁性的图像出发更为合理.

以 122 铁基超导体  $\text{BaFe}_2\text{As}_2$  为例, 母体是共线型反铁磁基态的金属, 通过 Ba 掺杂 Na, K 等引入空穴, 或 Fe 位掺杂 Co, Ni 等引入电子, 或 As 位同价掺杂 P (实际上化学势的移动, 也相当于引入了电子载流子), 均能抑制其长程磁有序而出现超导电性 (图 1(b))<sup>[80-88]</sup>. 自旋激发在低能段的动量分布通常与费米面拓扑密切相关, 具体表现为: 电子型掺杂材料中自旋激发是一个横向 ( $K$  方向) 拉伸的椭圆 (图 1(c)), 而空穴型掺杂材料中自旋激发则是一个径向 ( $H$  方向) 拉伸的椭圆 (图 1(d))<sup>[34-36,89-91]</sup>. 这是因为铁基超导体中自旋涨落存在轨道选择特征: 费米面并非由单一轨道占据, 而是不同动量位置有着不同的轨道占据,  $\Gamma$  点的空穴费米面和  $M$  点的电子费米面的形状差异导致了自旋激发在动量空间的各向异性<sup>[35]</sup>. 借助极化中子散射分析, 在单一  $Q$  点的自旋空间里, 也能观测到低能自旋激发的面内及面外的各向异性<sup>[92-98]</sup>. 这意味着铁基超导体中自旋-轨道耦合效应对自旋激发谱有明显的影响.

下面重点介绍低能自旋激发与超导电性的关系, 以及高能自旋激发的色散关系和强度分布, 并分析不同材料体系之间的共性规律.

### 3 自旋激发与超导电性的关系

和其他非常规超导家族一样, 铁基超导体中的自旋激发与超导电性的形成存在非常密切的联系. 在进入超导态之后, 零能附近的自旋激发可能会被抑制甚至形成自旋能隙, 在特定能量附近的自旋激发强度会聚集增强形成一个“自旋共振模”<sup>[34-36]</sup>. 定

义一个自旋共振模必须包括 3 个要素: 共振模出现的动量位置为母体反铁磁波矢 ( $Q = (\pi, 0)$ ) 附近; 共振模集中出现的特定能量附近, 定义峰值能量为自旋共振能量  $E_R$ ; 如果用低温超导态下激发强度减去高温正常态下的激发强度 ( $\Delta S(Q, \omega) = S(Q, \omega)_S - S(Q, \omega)_N$ ), 就能得到一个清晰的“自旋共振峰”, 峰的积分强度随温度变化行为表现为典型的超导序参量, 即强度随温度下降并在  $T_c$  之上保持为零<sup>[34-36]</sup>. 由于自旋共振模只能通过非弹性中子散射来直接观测, 又被称为“中子自旋共振模”. 自旋共振模早在铜氧化物高温超导体中就被普遍发现, 共振能量  $E_R$  与  $T_c$  呈简单的线性正比关系:  $E_R = 5.8k_B T_c$ , 其中  $k_B$  为玻尔兹曼常数<sup>[99-101]</sup>. 进一步, 结合重费米子超导体和部分铁基超导体的早期研究结果, 研究发现共振能量  $E_R$  与非常规超导体的拆对能隙  $2\Delta$  也呈简单正比关系<sup>[102]</sup>:  $E_R/(2\Delta) = 0.64$ . 理论上, 自旋共振模往往被认为是非常规超导体里库珀电子对在超导能隙限制之下的从自旋单态到三重态的一种集体激发, 对应于半导体中粒子-空穴对激发的激子物理图像, 该集体激发被称为“自旋激子”<sup>[100]</sup>. 在目前发现的几乎所有铁基超导体系中, 均观测到了自旋共振模的存在, 而且共振能量  $E_R$  也是和  $T_c$  呈线性正比:  $E_R = 4.9k_B T_c$  (图 2)<sup>[34,35,68,75,78,89,103-118]</sup>. 毫无疑问, 自旋共振现象与非常规超导电性的直接正相关, 说明自旋相互作用在非常规超导配对中扮演的角色极其重要, 预示自旋涨落很可能是非常规超导配对的媒介. 不过, 关于自旋共振模与非常规超导之间孰因孰果仍有

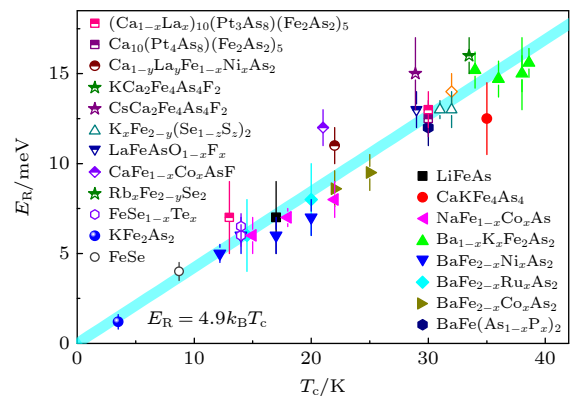


图 2 铁基超导体中自旋共振能量  $E_R$  与临界温度  $T_c$  的线性标度关系<sup>[78]</sup>

Fig. 2. Linear scaling relationship between the resonance energy  $E_R$  and critical temperature  $T_c$  in iron-based superconductors<sup>[78]</sup>.

很大的争议, 回答这个问题关键在于需要建立自旋共振模与超导配对对称性 (即能隙结构) 之间的直接联系。

关于自旋共振模的理论图像有很多, 前文提及的“自旋激子”图像可以明确给出自旋共振模的色散关系<sup>[100,101]</sup>. 该图像认为自旋共振现象来自于超导电子对的集体激发, 受到超导“能隙天花板”(即拆对能隙  $2\Delta$ ) 的限制, 最终自旋共振色散会与能隙的动量空间分布密切相关. 例如在单带 d 波超导的铜氧化物材料中, 能隙随动量分布是有极大值和节点变化的“穹顶天花板”, 受限的自旋共振激发体现为反常的“朝下色散”行为, 与正常态下“朝上色散”的自旋激发一起, 构成了独特的“沙漏型”色散关系 (图 3(a), (d))<sup>[101]</sup>. 那么, 在多带 s 波超导的铁基超导材料中, 能隙大小原则上并不随动量角度发生变化, 但不同费米面之间能隙大小存在差异, 我们可重新定义拆对能隙为  $\Delta_{\text{tot}} = |\Delta_{\mathbf{k}}| + |\Delta_{\mathbf{k}+\mathbf{Q}}|$ , 即连接散射波矢的两个费米面上能隙的绝对值之和. 在仅考虑一对费米面且均为 s 波能隙的情形下,  $\Delta_{\text{tot}}$  并没有动量依赖关系, 可以认为是“平顶天花板”. 在自旋激子图像下, 铁基超导体中将观测到“朝上色散”的自旋共振模, 且其斜率要比正常态自旋激发小得多 (因为带宽被能隙严重抑制)(图 3(b), (e))<sup>[119-123]</sup>.

自旋激子图像认为是弱耦合超导下的巡游电子自旋激发贡献了自旋共振模, 所以共振模的动量分布与费米面拓扑形貌相关, 能量分布与费米面的超导能隙相关. 这正是  $E_{\text{R}}/(2\Delta) = 0.64$  关系的由来<sup>[75,102]</sup>, 说明自旋共振模是超导能隙限制之下的束缚态激发, 共振信号原则上不会出现在  $2\Delta$  之上<sup>[105]</sup>.

无论是 d 波还是 s 波超导, 自旋共振模的出现意味着连接共振模波矢  $\mathbf{Q}_{\text{Res}}$  (注: 不一定严格是  $\mathbf{Q} = (\pi, 0)$ , 亦可能出现在非公度位置  $\mathbf{Q} \pm \delta$ ) 的两个费米面的超导能隙必须反号, 否则其相干因子为零而无法在超导能隙之内形成激发态<sup>[120-123]</sup>. 所以, 自旋共振模也被认为是铁基超导体中  $s_{\pm}$  波配对的关键实验证据<sup>[124]</sup>. 另一方面, 自旋共振模也可以基于强耦合超导下的局域自旋激发来解释. 自旋共振模强度的大部分来自于正常态自旋激发的重新分布, 因为在远离共振能  $E_{\text{R}}$  以下时, 自旋激发强度在超导态下反而会被抑制, 谱权重转移到了  $E_{\text{R}}$  附近, 对应的自旋共振模仍能保持正常态色散朝上的行为, 只是色散速率因阻尼的存在而变小了许多, 但色散速率与正常态磁激发之间存在定量关系<sup>[125-128]</sup>. 在强耦合图像下, 自旋共振模的出现不一定被超导能隙所限制, 其行为可能与能隙有关. 此外, 在强耦合图像下还存在另一种可能性, 就是费米面的超

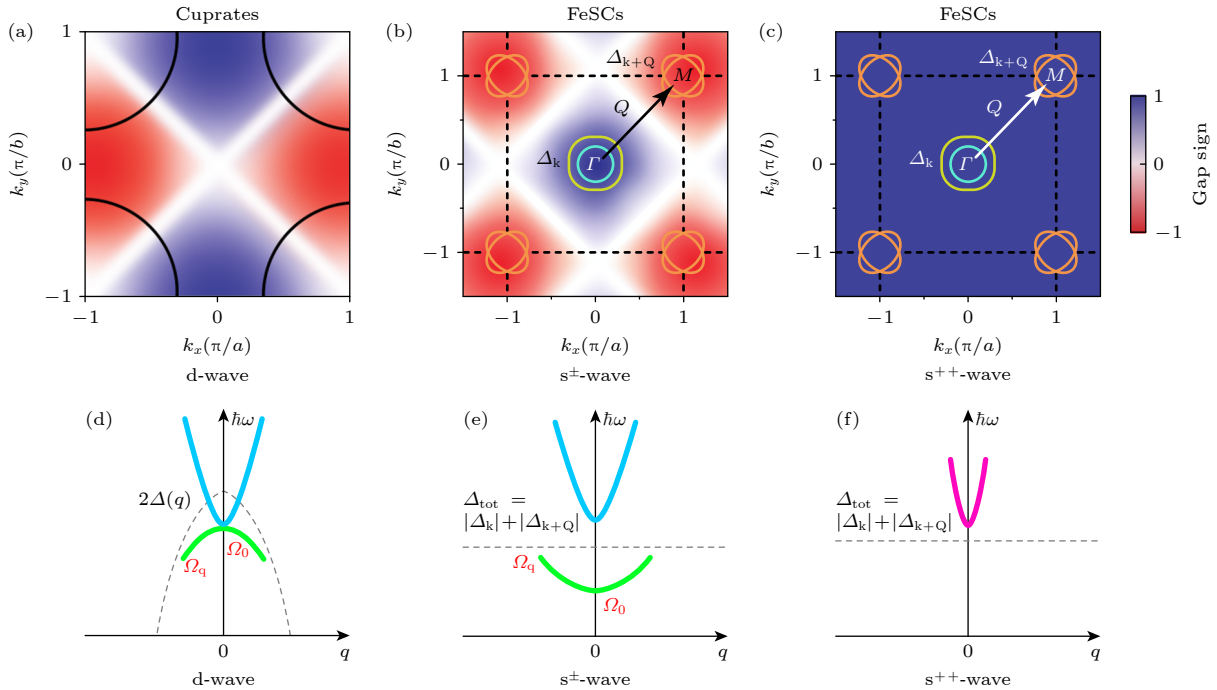


图 3 铜基和铁基超导体中自旋共振模面内色散与超导能隙的关系<sup>[78]</sup>

Fig. 3. Relationship between the energy dispersion of the spin resonance mode and the superconducting gap in cuprates and iron-based superconductors<sup>[78]</sup>.

导能隙并不反号,而是常规的  $s++$  波配对. 因为超导能隙  $\Delta_{\text{tot}}$  之下没有电子态密度,所以  $s++$  波超导态下低能自旋激发为  $\Delta_{\text{tot}}$  之上的类自旋波色散,其强度相对正常态也会增强,但不会出现尖锐的共振峰,此时不存在自旋共振模 (图 3(c), (f))<sup>[129-133]</sup>. 无论是弱耦合还是强耦合图像,铁基超导体中超导态下低能自旋激发的理论预期都是“朝上色散”的,目前绝大部分实验证据都支持铁基超导体属于  $s_{\pm}$  波配对,能隙在费米面上分布会各有差异<sup>[124]</sup>.

实验上,铁基超导体中自旋共振模的行为要远远比理论预言的复杂得多. 早期的非弹性中子散射结果发现  $\text{BaFe}_{2-x}\text{Ni}_x\text{As}_2$ ,  $\text{Ba}_{1-x}\text{K}_x(\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x)_2\text{As}_2$ ,  $\text{BaFe}_2(\text{As}_{1-x}\text{P}_x)_2$  的自旋共振模均具有“朝上色散”的特点<sup>[108,134-136]</sup>,基本符合理论预言. 但是近期在空穴型材料  $\text{KCa}_2\text{Fe}_4\text{As}_4\text{F}_2$  体系发现了明显的非公度且“朝下色散”的自旋共振模<sup>[78]</sup>,结合  $\text{KFe}_2\text{As}_2$  中公度的自旋共振现象<sup>[115]</sup>,我们可以预期在 122 型空穴过掺杂样品中也可能存在类似“朝下色散”自旋共振模. 更令人惊讶的是,  $\text{KCa}_2\text{Fe}_4\text{As}_4\text{F}_2$  的自旋共振模整体都在超导总能隙  $\Delta_{\text{tot}}$  之上,也就是说  $E_{\text{R}}/\Delta_{\text{tot}} > 1$ ,与其他非常规超导体明显不一致<sup>[78]</sup>. 详细测量最佳掺杂  $\text{Ba}_{1-x}\text{K}_x\text{Fe}_2\text{As}_2$  的自旋共振色散,也可以发现有相当一部分信号是在  $\Delta_{\text{tot}}$  之上的<sup>[137]</sup>. 考虑到铁基超导体多能带、多轨道和多能隙的特征,连接散射波矢的两个费米面上的能隙组合其实可以有很多可能性. 即便我们仅考虑同轨道电子之间的散射占优,也会发现在不同费米面大小和不同能隙大小的情形下,  $\Delta_{\text{tot}}$  实际上存在一定的动量依赖关系,而不是真正的“平顶天花板”. 自旋共振模要么是所有超导能隙组合限制之下的一种集体激发态 (仅有一个共振峰),要么是各种费米面之间散射的多个激发模的叠加状态 (有多个共振峰). 实验结果更支持后者,因为大部分铁基超导体的共振模能量分布很宽<sup>[34]</sup>,部分体系如  $\text{NaFe}_{1-x}\text{Co}_x\text{As}$ ,  $\text{Ba}(\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x)_2\text{As}_2$  等可以在同一  $Q$  点出现两个不同能量的共振模<sup>[138,139]</sup>.

在双层结构的  $\text{CaKFe}_4\text{As}_4$  体系中,自旋共振模劈裂成为两类沿  $c$  方向正余弦平方调制的奇模和偶模,调制周期由最近邻 Fe-As 面间距所决定<sup>[75]</sup>. 自旋共振模的奇偶调制行为与双层铜氧化物超导体的行为非常类似,而且后者奇偶模的能量差大致等于邻近 Cu-O 面之间的磁交换耦合能,这种层间耦合效应被认为是提升材料  $T_c$  的关键<sup>[100]</sup>. 极化中

子散射分析表明,在铁砷化物的 3 种磁构型下,其自旋共振模在自旋空间总是存在普遍的  $c$  方向择优取向,即  $c$  方向的自旋激发更早出现且强度最强 (图 4)<sup>[76,77,93-98,118]</sup>. 自旋共振模的各向异性可以很好地解释其能量展宽以及多个共振模的出现,同时预示着自旋-轨道耦合效应受到层间耦合的强烈影响,或者说层间自旋激发在超导配对中占据主导地位. 进一步,我们可以发现铁基超导体中层间耦合效应正是自旋共振模三维色散的根源. 如果定义共振模在  $c$  方向上的色散带宽为奇数层和偶数层的  $E_{\text{R}}$  之差 ( $E_{\text{even}} - E_{\text{odd}}$ ),在除以  $k_{\text{B}}T_c$  归一化之后,就建立了自旋共振三维色散与 Fe-As 面间距  $d$  的标度关系,其中  $d = 6.7 \text{ \AA}$  为准二维和三维色散的临界点 (图 5)<sup>[140]</sup>. 如果 Fe-As 层间距  $d$  减小,则意味着层间耦合加强,系统更倾向于形成静态的三维反铁磁序,即部分自旋激发会凝聚到零能,对超导性的形成是不利的. 此时要获得更高的  $T_c$ ,则需要提高掺杂浓度来抑制静态磁有序的形成. 这个图像很好地解释了铁基超导体相同结构体系中的  $T_c$  存在不同的掺杂浓度依赖关系,也说明仅靠增强层间耦合并不能有效地提升其  $T_c$ . 的确,在铁砷化物超导体中,无论是增加 Fe-As 层的堆叠还是增强准二维特性,  $T_c$  并不总是有所提升的<sup>[17,33]</sup>,这与铜氧化物超导体存在很大的区别<sup>[81,141]</sup>. 依据图 5,我们也可以大致推测 1111 体系 ( $d \approx 8.75 \text{ \AA}$ ) 应该具有准二维的自旋激发行为<sup>[33,52]</sup>,自旋共振模在  $c$  方向几乎没有色散 (目前尚无相关报道),和准二维的铜氧化物超导体比较类似<sup>[100,101]</sup>. 另一个佐证是,1111 体系中磁交换耦合能比率 ( $J_c/J_{\text{ab}}$ )

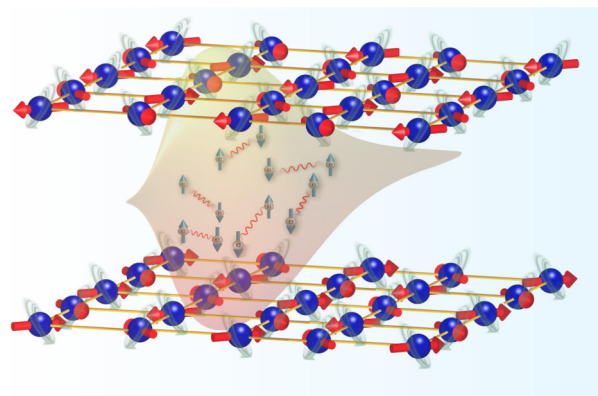


图 4  $\text{CaK}(\text{Fe}_{1-x}\text{Ni}_x)_4\text{As}_4$  中自旋涡旋涨落与  $c$  方向择优的自旋共振模<sup>[77]</sup>

Fig. 4. Spin-vortex fluctuations and  $c$ -axis preferred spin resonance mode in  $\text{CaK}(\text{Fe}_{1-x}\text{Ni}_x)_4\text{As}_4$ <sup>[77]</sup>.



大约是 122 体系的 1%，具有明显的准二维磁性关联效应，在不同稀土替换的 1111 体系中  $T_c$  从 26 K 到 55 K 不等。这种准二维磁关联不一定就有助于提升  $T_c$ ，而是要看具体情况。我们最近在具有最大 FeAs 层间距的 22241 体系 ( $\text{Ba}_2\text{Ti}_2\text{Fe}_2\text{As}_4\text{O}$ ,  $d = 13.7 \text{ \AA}$ ) 开展了非弹性中子散射的实验，观测到该体系的低能自旋激发呈准二维特征，且强度要比其他体系更弱。该体系的  $T_c = 21 \text{ K}$ ，并不比其他铁砷化物超导体要高。铁砷化物超导体的  $T_c$  至今未能突破液氮温区，或许正是因为层间耦合的关键影响，导致调节某个单一变量（如化学掺杂或外部压力）却带了多个复合效应，以至于不总是有利于超导 [17]。

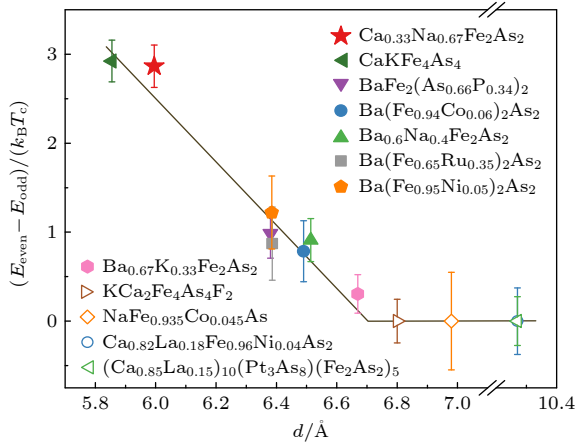


图 5 铁基超导体中自旋共振三维色散与 Fe-As 面间距  $d$  的标度关系 [140]

Fig. 5. Scaling relationship between the 3D energy dispersion of the spin resonance mode and the Fe-As interlayer distance  $d$  [140].

#### 4 自旋激发的色散关系及强度分布

虽然非常规超导体中的自旋共振模出现在低能自旋激发区域，但并不意味着高能自旋激发就与超导电性无关。实际上，可以认为高能自旋激发提供了足够的能量尺度，相当于局域 Heisenberg 模型中的有效磁交换耦合能  $J$ ，它由自旋激发的色散和带宽所决定；而低能自旋激发则提供了超导电子配对凝聚所需要的磁性能量，即自旋激发在超导相变前后的强度变化，主要由自旋共振模所贡献 [90]。借助公式  $\Delta E_{\text{ex}} = \sum_{\langle i,j \rangle} J_{i,j} (\langle \mathbf{S}_i \cdot \mathbf{S}_j \rangle_S - \langle \mathbf{S}_i \cdot \mathbf{S}_j \rangle_N)$  (其中  $J_{i,j}$  为不同近邻位置的磁交换耦合能， $\langle \mathbf{S}_i \cdot \mathbf{S}_j \rangle_{S,N}$  为超导态/正常态下的整体散射

截面，与动态磁化率虚部成正比)，可以估算超导态下磁性相互作用的能量变化，发现其强度是超导所需凝聚能的数倍，是完全支持自旋激发驱动的超导配对物理图像的 [90,136]。

以 Xie 等 [142] 测量的 112 体系  $\text{Ca}_{0.82}\text{La}_{0.18}\text{Fe}_{0.96}\text{Ni}_{0.04}\text{As}_2$  为例，简要介绍在不同能量窗口下铁砷化物超导体自旋激发谱的典型特征。该体系为电子型掺杂，即电子口袋相对空口袋要大一些，所以第一布里渊区自旋激发在低能为横向（即  $[\pm 1, K]$  或  $[H, \pm 1]$  方向）拉伸的椭圆形状，同时出现在  $(\pi, 0)$  和  $(0, \pi)$  位置（图 6(a)）。随能量的增大，自旋激发的椭圆会逐渐增大，并沿着横向方向的色散更明显，约在 80 meV 附近劈裂成两个峰（图 6(b)–(e)）。在 100 meV 以上，自旋激发的信号逐渐向  $Q = (\pm 1, \pm 1)$  靠拢，并与第二布里渊区信号汇合成较为弥散的圆形信号。由于实验测量的统计效率差异，在  $Q = (-1, \pm 1)$  和  $Q = (+1, \pm 1)$  的信号强度会有所区别（图 6(f)–(i)）。我们可与同样为电子型掺杂的  $\text{BaFe}_{2-x}\text{Ni}_x\text{As}_2$  体系中的自旋激发谱比较，两者基本上是大同小异，即低能激发都是横向拉伸的椭圆，高能激发则朝着布里渊区边界  $Q = (\pm 1, \pm 1)$  色散 [36,91,143]。如果是空穴型掺杂体系，例如  $\text{Ba}_{1-x}\text{K}_x\text{Fe}_2\text{As}_2$ ,  $\text{CaKFe}_4\text{As}_4$ ,  $\text{NaFeAs}$  等，则低能磁激发应为纵向（即  $[H, 0]$  或  $[0, K]$  方向）拉伸的椭圆 [75,89,90,144]。在完全过掺杂的  $\text{KFe}_2\text{As}_2$  中，低能自旋激发呈现出沿纵向的非公度行为 [34]。在空穴型外费米面非常大的  $\text{KCa}_2\text{Fe}_4\text{As}_4\text{F}_2$  材料中，亦可认为是重度空穴过掺杂体系，低能磁激发已是沿着纵向劈裂的两个非公度峰 [78]。随能量的增大，空穴型铁砷化物的自旋激发不断色散，尽管低能部分为纵向拉伸甚至是非公度的，到了高能仍然要汇聚布里渊区边界  $Q = (\pm 1, \pm 1)$  附近。由此，可以预期某些重度空穴掺杂的铁砷化物里，自旋激发会呈现类似铜氧化物中的“沙漏型”行为，但二者的微观起源不一定相同。

从局域 Heisenberg 模型出发，可认为自旋激发在横向和纵向色散的差异来自于面内自旋交换相互作用的各向异性，即  $J_{1a} \neq J_{1b}$ ，以及它们的阻尼系数（与准粒子寿命呈倒数关系） $\Gamma_a \neq \Gamma_b$ 。假设  $J_{1a} = J_{1b}$ ，那么必然横向的色散带顶应该出现在  $Q = (\pm 1, \pm 0.5)$ ，而不是  $Q = (\pm 1, \pm 1)$ ，这与所有的实验事实均不符 [34,145–148]。122 体系的母体基态为正交条纹反铁磁相，即晶格参数和磁矩取向都是面内  $C_2$  对称的，从这个角度来理解  $J_{1a} \neq J_{1b}$  是完

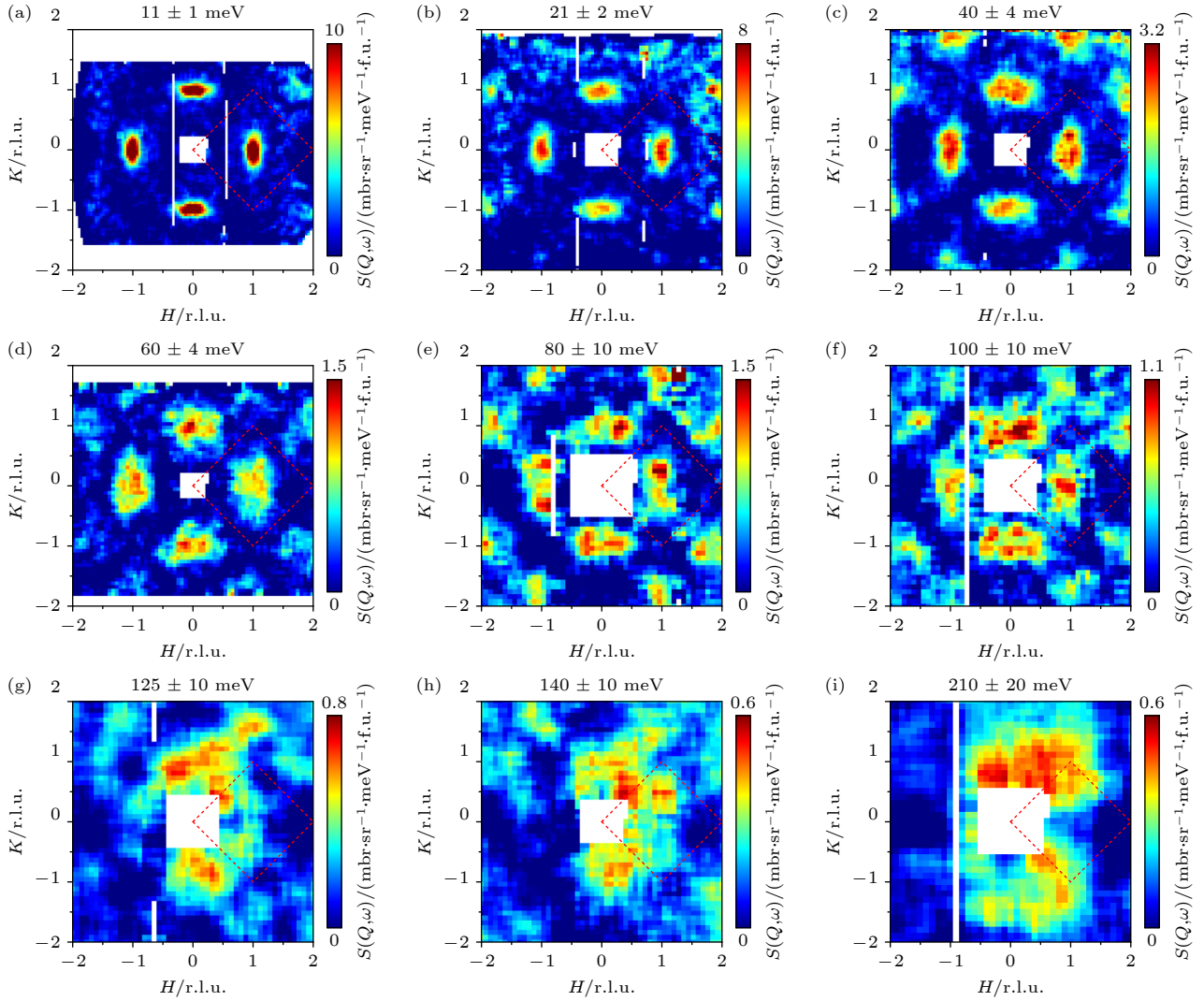

 图 6  $\text{Ca}_{0.82}\text{La}_{0.18}\text{Fe}_{0.96}\text{Ni}_{0.04}\text{As}_2$  中不同能量窗口的自旋激发谱图<sup>[142]</sup>

 Fig. 6. Energy slice of the spin excitations in  $\text{Ca}_{0.82}\text{La}_{0.18}\text{Fe}_{0.96}\text{Ni}_{0.04}\text{As}_2$  at different energy windows<sup>[142]</sup>.

全合理的. 如果考虑 122 体系在最佳掺杂甚至过掺杂区域, 会发现这种低能自旋激发的面内各向异性分布依旧存在<sup>[90,91,149]</sup>. 但是此时体系的结构相变或磁相变已非常微弱或几乎完全消失, 从对称性来说可以认为是  $C_4$  四重对称的, 原则上应满足  $J_{1a} = J_{1b}$ . 我们似乎可以认为母体中面内各向异性的磁性关联并没有被掺杂破坏, 而是把“记忆”保留在了最佳掺杂甚至过掺杂的超导相中. 如果注意到一些天然是四方结构的  $\text{CaKFe}_4\text{As}_4$  和  $\text{KCa}_2\text{Fe}_4\text{As}_4\text{F}_2$  体系, 就会发现它们的低能自旋激发仍然是各向异性的椭圆分布<sup>[75-78]</sup>, 这似乎与晶格的四重对称性不符, 且很难从  $J_{1a} \neq J_{1b}$  角度来理解 (此时  $a$  轴和  $b$  轴已无法区分). 但其实这种椭圆分布的自旋激发仍然满足  $C_4$  对称性, 理由是体系的旋转对称性是以  $Q = 0$  的旋转轴来定义的, 而不是磁激发

出现的有限大小波矢位置 ( $Q = (\pi, 0)$  或  $(0, \pi)$ ).

如前所述, 虽然各向异性的局域 Heisenberg 模型能够基本描述 122 体系母体的自旋波, 但从巡游磁性的关联 Hubbard 模型出发, 能够更准确地描述退孪晶后的自旋波行为<sup>[79]</sup>. 因此, 从巡游磁性角度来理解低能自旋激发的动量分布更为合理, 即由费米面上同轨道 (主要是  $d_{xz}$  和  $d_{yz}$  轨道) 带间散射所贡献. 空穴型和电子型体系在低能自旋激发之所以分别为纵向和横向拉伸的椭圆, 是因为  $d_{xz}$  和  $d_{yz}$  轨道在费米面的占据位置差异造成的. 在退孪晶的样品中可以清晰看到这种具有轨道选择特性的低能自旋激发, 即在  $(\pi, 0)$  和  $(0, \pi)$  处有明显强度差异, 甚至会造成自旋共振模的明显差异<sup>[150-155]</sup>. 此外, 铁基超导体中自旋激发的局部能量分布并不受到谱仪分辨率限制, 而是在不同能量段具有一定



程度的能量展宽,这与铜基超导体中局域磁矩贡献的自旋波或量子自旋液体材料中自旋子贡献的连续型激发均有明显区别<sup>[156-160]</sup>,说明铁基超导体的磁性并不完全适合单纯用局域或长程纠缠自旋关联模型来描述。

目前为止,受到单晶样品的限制,利用非弹性中子散射获得完整自旋激发谱的铁砷化物体系还较少。图7比较了3个典型铁砷化物超导体系(122体系、111体系和112体系)的自旋激发色散及强度的能量依赖关系,其中122体系含BaFe<sub>2</sub>As<sub>2</sub>和CaFe<sub>2</sub>As<sub>2</sub>两个母体材料<sup>[142,145,147]</sup>。可以发现112体系与122体系的色散关系十分接近,仅仅是在低能部分横向色散斜率更快,或者说低能激发的椭圆横向拉伸更长;高能激发部分则112体系的带顶要高一些,但考虑到谱仪能量分辨率,实际上两个体系的带顶基本上在180—200 meV之内(图7(a))。在122体系中,电子型掺杂主要抑制80 meV以下的低能磁激发,而高能磁激发强度和色散几乎不随掺杂演变,直到极度过掺杂不超导的BaFe<sub>1.7</sub>Ni<sub>0.3</sub>As<sub>2</sub>材料,50 meV以下的低能自旋激发完全消失,形成了类似于母体三维自旋波的“自旋能隙”效应<sup>[90,91]</sup>。空穴型掺杂则主要抑制高能自旋激发的强度,高能色散的带顶下移到100—120 meV附近,对应低能自旋激发有所增强(如NaFeAs和Ba<sub>0.67</sub>K<sub>0.33</sub>Fe<sub>2</sub>As<sub>2</sub>) (图7(a), (b))<sup>[90,152]</sup>。这意味着低能自旋激发的存在对超导电性的形成至关重要,定性理解了为什么

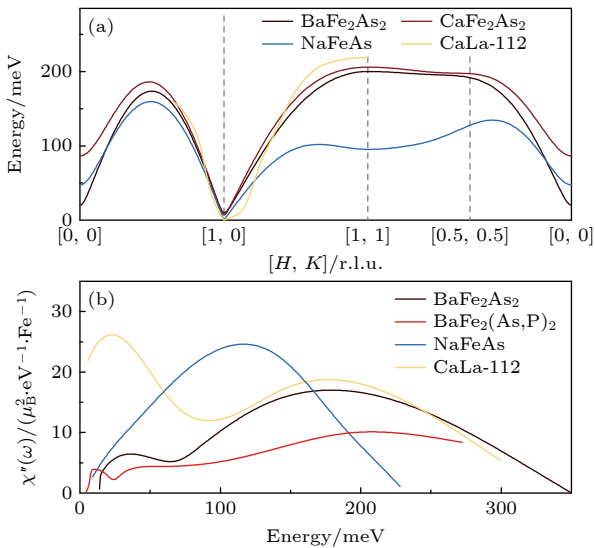


图7 (a) 自旋激发谱色散关系; (b) 自旋激发强度的能量分布

Fig. 7. (a) Dispersion of spin excitations; (b) energy dependence of spin excitations.

在100%空穴掺杂KFe<sub>2</sub>As<sub>2</sub>中依旧存在3 K左右的超导电性——该材料在 $\Gamma$ 点和 $M$ 点空穴费米面的带间散射波矢和能隙分布依旧可以用 $s_{\pm}$ 波来描述,对应在1.2 meV附近出现极其非公度自旋共振模<sup>[115,161]</sup>。最近,我们也基于飞行时间技术的非弹性中子散射获得了其他铁砷化物体系(如CaK(Fe<sub>1-x</sub>Ni<sub>x</sub>)<sub>4</sub>As<sub>4</sub>, KCa<sub>2</sub>Fe<sub>4</sub>As<sub>4</sub>F<sub>2</sub>, (Ca<sub>1-x</sub>La<sub>x</sub>)<sub>10</sub>(Pt<sub>3</sub>As<sub>8</sub>)(Fe<sub>2</sub>As<sub>2</sub>)<sub>5</sub>)的完整自旋激发谱,相关结果与上文所述的定性特征完全一致,仅细节上略有不同。

非弹性中子散射实验数据可用钒的非相干散射截面来实现完全归一化,这样不同谱仪、不同样品、不同环境下测量的结果均可以归一化成为散射截面的绝对值,从而可以互相定向比较<sup>[34]</sup>。如图7(b)所示,我们将获得的自旋激发谱信号在第一布里渊区积分,并归一化为单位Fe离子的动态磁化率虚部 $\chi''$ ,代表了自旋涨落的绝对强度随能量的分布。与图7(a)比较接近的色散关系相比, $\chi''(E)$ 在不同体系中差异巨大。 $\chi''(E)$ 的特征可以粗略划分为高能的巨大鼓包和低能的小鼓包,前者由面内的局域磁性相互作用决定,峰值位置可定义为带宽,后者由费米面附近巡游电子的散射决定<sup>[142]</sup>。特别注意的是,低能的小鼓包并不是自旋共振模(它应该在更低能量出现,如BaFe<sub>2</sub>(As, P)<sub>2</sub>体系<sup>[136]</sup>)。对于巡游性更强的112体系,低能的小鼓包要更加明显,甚至与高能的大鼓包几乎相当<sup>[142]</sup>。在NaFeAs中的自旋激发带顶下移导致两个鼓包合为一体无法区分<sup>[144]</sup>。

进一步将 $\chi''(E)$ 沿能量再积分,就得到了系统整体自旋涨落强度的绝对值——涨落磁矩 $\langle m^2 \rangle$ ,如BaFe<sub>2</sub>As<sub>2</sub>为 $\langle m^2 \rangle = 3.6\mu_B^2/\text{Fe}$ , CaLa-112体系为 $\langle m^2 \rangle = 4.6\mu_B^2/\text{Fe}$ <sup>[117,142]</sup>。考虑到BaFe<sub>2</sub>As<sub>2</sub>还有 $\langle m_0^2 \rangle = 0.76\mu_B^2/\text{Fe}$ 的静态磁矩<sup>[54]</sup>,所以它的总磁矩应该为 $4.36\mu_B^2/\text{Fe}$ 。图8(a)给出了目前已有的涨落磁矩和静态磁矩数据的铁砷化物超导体系,可以看出它们总磁矩为3—5 $\mu_B^2/\text{Fe}$ 。因此,不同铁砷化物体系虽然 $\chi''(E)$ 行为差异很大,但总的涨落磁矩基本在4 $\mu_B^2/\text{Fe}$ 左右,这大约是铜氧化物超导体总涨落磁矩( $\langle m^2 \rangle \approx 1.9\mu_B^2/\text{Cu}$ )的两倍<sup>[156,157,162,163]</sup>。由 $\langle m^2 \rangle = (g\mu_B)^2 S(S+1)$ 可以推断(其中朗德因子 $g=2$ ),铁基超导体的有效自旋 $S$ 接近1/2。这显然不满足纯局域模型,因为Fe<sup>2+</sup>为3d<sup>6</sup>占据,局域模型下 $S=2$ ,得 $\langle m^2 \rangle = 24\mu_B^2/\text{Fe}$ 。再次印证了铁

砷化物超导体磁性更适合用中等关联的巡游模型来理解<sup>[149]</sup>. 最后, 图 8(b) 中列出了不同材料的带宽 (即高能大鼓包的能量位置, 对应色散曲线顶部位置), 范围在 100—200 meV, 比铜氧化物超导体要低一些. 通过对同结构但不同掺杂材料的比较, 可以看出铁砷化物自旋激发带宽与 As 距离 Fe-Fe 平面的高度反相关. 这说明, As 的 4p 轨道与 Fe 的 3d 轨道存在一定的杂化效应, As 高度的降低有助于增强 Fe-Fe 面内磁关联, 导致带宽变大<sup>[136,142,144]</sup>. 结合图 7(b), 我们发现带宽变大的同时伴随着高能自旋激发被抑制、低能自旋激发略微增强, 即巡游磁性涨落变强, 这可能对超导电性的形成有利.

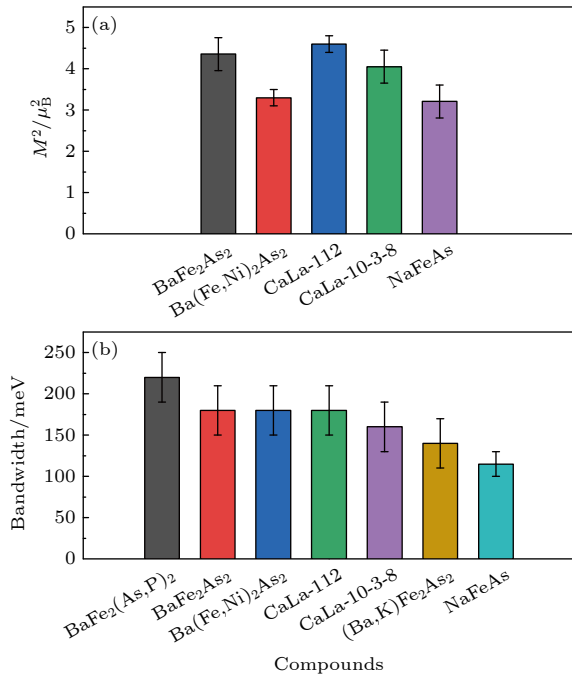


图 8 (a) 自旋激发谱积分强度; (b) 自旋激发谱的带宽对比  
Fig. 8. (a) Total fluctuations strength of spin excitations; (b) band width of spin excitation in different compounds.

## 5 总结与展望

铁基超导体的多材料结构体系和复杂磁性相互作用为研究非常规超导的微观机理提供了绝佳平台, 特别是其自旋激发谱的行为既与铜氧化物超导体类似, 又在细节上有所不同. 结合两者在超导配对对称性等方面的差异, 有可能为建立高温超导统一磁性起源物理图像提供关键线索. 通过横向对比不同体系铁砷化物超导体中自旋激发谱, 我们可

以得出如下普适规律.

1) 无论铁砷化物的磁有序构型为哪种或是否存在静态磁有序, 其自旋激发出现的动量位置均在  $(\pi, 0)$  和  $(0, \pi)$  位置 (由 Fe 离子晶格的磁胞所定义).

2) 低能自旋激发在动量空间和自旋空间均存在明显的各向异性, 并与费米面的拓扑结构及轨道占据分布直接相关, 预示着不同自旋-轨道耦合下具有轨道选择特性的自旋激发.

3) 中子自旋共振模普遍存在于所有铁砷化物超体的超导态中, 其共振能量  $E_R$  与临界温度  $T_c$  呈简单线性正比关系:  $E_R = 4.9k_B T_c$ , 且具有普遍  $c$  方向择优特征. 自旋共振模的面内色散并不受到超导能隙所限制, 这与传统的自旋激子模型存在明显矛盾. 自旋共振模的面外色散则由 Fe-As 面间距所决定, 说明三维自旋关联效应不可忽略, 或许是厘清自旋涨落在超导电性中角色的关键.

4) 不同体系的自旋激发谱色散关系大同小异, 虽然局域的 Heisenberg 模型可以给出面内各向异性的最近邻有效交换相互作用和相似的次近邻有效交换相互作用, 但基于巡游磁性的关联 Hubbard 模型能够更准确地描述退孪晶后的自旋波行为, 而且从巡游磁性角度来理解不同体系中自旋激发的动量分布更为合理.

5) 自旋激发强度随能量的演化在不同体系中差异非常大, 表明巡游和局域磁性相互作用存在相互竞争关系. 然而其总磁矩大小基本在  $4\mu_B^2/\text{Fe}$  左右, 说明有效自旋  $S = 1/2$  更符合描述巡游特征占优的磁性相互作用. 自旋激发带宽范围在 100—200 meV, 或与 As 距离 Fe-Fe 平面的高度相关.

总之, 和准二维铜氧化物超导体中局域磁性贡献为主的自旋激发谱相比较, 铁基超导体的磁激发谱具有更加丰富的物理, 其中巡游磁性占据主导地位. 和铜氧化物超导体一样, 铁基超导体具有较强的自旋涨落强度、与超导相变直接相关的自旋共振模和体系差异较小的色散关系, 这为建立统一的自旋涨落驱动下的高温超导微观机理提供了实验数据支撑. 但同时需要特别注意, 在不同铁砷化物体系的自旋-轨道耦合作用下, 多轨道、多费米面、多能隙的变化导致其自旋激发出现多样性, 特别是三维自旋关联效应凸显, 这说明自旋相互作用驱动的层间配对和层内配对是同等重要的, 必须在相关的理论中给予充分的考虑. 我们注意到新近发现的镍

氧化物超导体, 其层间的超导配对可能占据主导, 这恰恰说明铁基超导体的微观机理可能介于铜基超导体和镍基超导体之间, 是重要的桥梁。

为了准确理解自旋相互作用在铁基超导电性的具体角色, 我们还需要给出更多自旋激发谱的细节特征, 特别是定量描述和多材料体系的互相印证十分重要. 我们希望在未来的研究中, 能够回答如下关键科学问题: 具体哪个轨道与自旋耦合强烈并能直接影响超导电性? 超导能隙的形成与自旋共振模出现及具体色散行为的因果关系是什么? 巡游磁性模型如何准确描述不同体系的自旋激发谱? 系统改变材料的微结构或掺杂方式会给自旋激发谱带来什么变化? 自旋激发的色散和整体强度与超导临界温度有什么定量联系? 我们期待铁基超导体自旋激发谱的系统深入研究, 最终能够为打开非常规超导机理的大门提供一把金钥匙。

## 参考文献

- [1] Stewart G R 2017 *Adv. Phys.* **66** 75
- [2] Norman M R 2011 *Science* **332** 196
- [3] Zhou X, Lee W S, Imada M, Trivedi N, Phillips P, Kee H Y, Torma P, Erements M 2021 *Nat. Rev. Phys.* **3** 462
- [4] Tran H, Vu T N 2023 *Phys. Rev. Materials* **7** 054805
- [5] Drozdov A P, Erements M I, Troyan I A, Ksenofontov V, Shylin S I 2015 *Nature* **525** 73
- [6] Drozdov A P, Kong P P, Minkov V S, Besedin S P, Kuzovnikov M A, Mozaffari S, Balicas L, Balakirev F F, Graf D E, Prakapenka V B, Greenberg E, Knyazev D A, Tkacz M, Erements E I 2019 *Nature* **569** 528
- [7] Zhong X, Tse J S, Hemley R J, Liu H 2022 *The Innovation* **3** 100226
- [8] Shan P F, Wang N N, Sun J P, Cheng J G 2021 *Physics* **50** 217 (in Chinese) [单鹏飞, 王宁宁, 孙建平, 程金光 2021 *物理* **50** 217]
- [9] Sun Y, Liu H Y, Ma Y M 2021 *Acta Phys. Sin.* **70** 017407 (in Chinese) [孙莹, 刘寒雨, 马琰铭 2021 *物理学报* **70** 017407]
- [10] Li Z W, He X, Zhang C L, Lu K, Min B, Zhang J, Zhang S J, Zhao J F, Shi L C, Peng Y, Feng S M, Deng Z, Song J, Liu Q Q, Wang X C, Yu R C, Wang L H, Li Y Z, Bass J D, Prakapenka V, Chariton S, Liu H Z, Jin C Q 2023 *Sci. China Phys. Mech. Astron.* **66** 267411
- [11] Zhang K, Chen W, Zhang Y, Guo J, Chen S, Huang X, Cui T 2024 *Sci. China Phys. Mech. Astron.* **67** 238211
- [12] Gao M, Lu Z Y, Xiang T 2015 *Physics* **44** 421 (in Chinese) [高森, 卢仲毅, 向涛 2015 *物理* **44** 421]
- [13] Stockert O, Steglich F 2011 *Annu. Rev. Condens. Matter Phys.* **2** 79
- [14] Yang Y F 2014 *Physics* **43** 80 (in Chinese) [杨义峰 2014 *物理* **43** 80]
- [15] White B D, Thompson J D, Maple M B 2015 *Physica C* **514** 246
- [16] Lee P A, Nagaosa N, Wen X G 2006 *Rev. Mod. Phys.* **78** 17
- [17] Chen X H, Dai P C, Feng D L, Xiang T, Zhang F C 2014 *Nat. Sci. Rev.* **1** 371
- [18] Si Q M, Yu R, Abrahams E 2016 *Nat. Rev. Mater.* **1** 16017
- [19] Wu W, Cheng J G, Matsubayashi K, Kong P P, Lin F K, Jin C Q, Wang N L, Uwatoko Y, Luo J L 2014 *Nat. Commun.* **5** 5508
- [20] Cheng J G, Matsubayashi K, Wu W, Sun J P, Lin F K, Luo J L, Uwatoko Y 2015 *Phys. Rev. Lett.* **114** 117001
- [21] Liu Z Y, Dong Q X, Yang P T, Shan P F, Wang B S, Sun J P, Dun Z L, Uwatoko Y, Chen G F, Dong X L, Zhao Z X, Chenget J G 2022 *Phys. Rev. Lett.* **128** 187001
- [22] Yang P T, Dong Q X, Shan P F, Liu Z Y, Sun J P, Dun Z L, Uwatoko Y, Chen G F, Wang B S, Cheng J G 2022 *Chin. Phys. Lett.* **39** 067401
- [23] Li D F, Lee K, Wang B Y, Osada M, Crossley S, Lee H R, Cui Y, Hikita Y, Hwang H Y 2019 *Nature* **572** 624
- [24] Gu Q Q, Wen H H 2022 *The Innovation* **3** 100202
- [25] Ding X, Shen S C, Leng H Q, Xu M H, Zhao Y, Zhao J R, Sui X L, Wu X Q, Xiao H Y, Zu X T, Huang B, Luo H Q, Yu P, Qiao L 2022 *Sci. China Phys. Mech. Astron.* **65** 267411
- [26] Sun H L, Huo M W, Hu X W, Li J Y, Liu Z J, Han Y F, Tang L Y, Mao Z Q, Yang P T, Wang B S, Cheng J G, Yao D X, Zhang G M, Wang M 2023 *Nature* **621** 493
- [27] Wang M, Wen H H, Wu T, Yao D X, Xiang T 2024 *Chin. Phys. Lett.* **41** 077402
- [28] Luo H Q 2024 *Mod. Phys.* **36** 46 (in Chinese) [罗会仟 2024 *现代物理知识* **36** 46]
- [29] Zhu Y H, Peng D, Zhang E K, Pan B Y, Chen X, Chen L X, Ren H F, Liu F Y, Hao Y Q, Li N, Xing Z F, Lan F J, Han J Y, Wang J J, Jia D H, Wo H L, Gu Y Q, Gu Y M, Ji L, Wang W B, Gou H Y, Shen Y, Ying T P, Chen X L, Yang W G, Cao H B, Zheng C L, Zeng Q S, Guo J G, Zhao J 2024 *Nature* **631** 531
- [30] Wang N N, Wang G, Shen X L, Hou J, Luo J, Ma X P, Yang H X, Shi L F, Dou J, Feng J, Yang J, Shi Y Q, Ren Z, Ma H M, Yang P T, Liu Z Y, Liu Y, Zhang H, Dong X L, Wang Y X, Jiang K, Hu J P, Nagasaki S, Kitagawa K, Calder S, Yan J Q, Sun J P, Wang B S, Zhou R, Uwatoko Y, Cheng J G 2024 *Nature* **634** 579
- [31] Zhang Y N, Su D J, Huang Y E, Shan Z Y, Sun H L, Huo M W, Ye K X, Zhang J W, Yang Z H, Xu Y K, Su Y, Li R, Smidman M, Wang M, Jiao L, Yuan H Q 2024 *Nat. Phys.* **20** 1269
- [32] Wu W, Luo Z, Yao D X, Wang M 2024 *Sci. China Phys. Mech. Astron.* **67** 117402
- [33] Stewart G R 2011 *Rev. Mod. Phys.* **83** 1589
- [34] Dai P C 2015 *Rev. Mod. Phys.* **87** 855
- [35] Gong D L, Luo H Q 2018 *Acta Phys. Sin.* **67** 207407 (in Chinese) [龚冬良, 罗会仟 2018 *物理学报* **67** 207407]
- [36] Luo H Q 2017 *Chin. Sci. Bull.* **62** 3955
- [37] Gong D L, Yi M, Wang M, Xie T, Zhang W L, Danilkin S, Deng G C, Liu X Z, Park J T, Ikeuchi K, Kamazawa K, Mo S K, Hashimoto M, Lu D H, Zhang R, Dai P C, Birgeneau R J, Li S L, Luo H Q 2022 *Front. Phys.* **10** 886459
- [38] Dai P C, Hu J P, Dagotto E 2012 *Nat. Phys.* **8** 709
- [39] Luo H Q, Zhang R, Laver M, Yamani Z, Wang M, Lu X Y, Wang M Y, Chen Y C, Li S L, Chang S, Lynn J W, Dai P C 2012 *Phys. Rev. Lett.* **108** 247002
- [40] Lu X Y, Gretarsson H, Zhang R, Liu X R, Luo H Q, Tian W, Laver M, Yamani Z, Kim Y J, Nevidomskyy A H, Si Q M, Dai P C 2013 *Phys. Rev. Lett.* **110** 257001
- [41] Iyo A, Kawashima K, Kinjo T, Nishio T, Ishida S Y, Fujihisa H, Gotoh Y, Kihou K, Eisaki H, Yoshida Y 2016 *J.*



- Am. Chem. Soc.* **138** 3410
- [42] Meier W R, Kong T, Bud'ko S L, Canfield P C 2017 *Phys. Rev. Materials* **1** 013401
- [43] Kreyssig A, Wilde J M, Böhmer A E, Tian W, Meier W R, Li B, Ueland B G, Xu M Y, Bud'ko S L, Canfield P C, McQueeney R J, Goldman A I 2018 *Phys. Rev. B* **97** 224521
- [44] Wang Z C, He C Y, Wu S Q, Tang Z T, Liu Y, Ablimit A, Feng C M, Cao G H 2016 *J. Am. Chem. Soc.* **138** 7856
- [45] Wang T, Chu J N, Jin H, Feng J X, Wang L L, Song Y K, Zhang C, Xu X G, Li W, Li Z J, Hu T, Jiang D, Peng W, Liu X S, Mu G 2019 *J. Phys. Chem. C* **123** 13925
- [46] Wang Z C, He C Y, Wu S Q, Tang Z T, Liu Y, Ablimit A, Tao Q, Feng C M, Xu Z A, Cao G H 2017 *J. Phys.: Condens. Matter* **29** 11LT01
- [47] Wang Z C, He C Y, Wu S Q, Tang Z T, Liu Y, Cao G H 2017 *Chem. Mater.* **29** 1805
- [48] Wu S Q, Wang Z C, He C Y, Tang Z T, Liu Y, Cao G H 2017 *Phys. Rev. Materials* **1** 044804
- [49] Sun Y L, Jiang H, Zhai H F, Bao J K, Jiao W H, Tao Q, Shen C Y, Zeng Y W, Xu Z A, Cao G H 2012 *J. Am. Chem. Soc.* **134** 12893
- [50] Zhang C, Wu Q Y, Hong W S, Liu H, Zhu S X, Song J J, Zhao Y Z, Wu F Y, Liu Z T, Liu S Y, Yuan Y H, Huang H, He J, Li S L, Liu H Y, Duan Y X, Luo H Q, Meng J Q 2022 *Sci. China Phys. Mech. Astron.* **65** 237411
- [51] Kamihara Y, Watanabe T, Hirano M, Hosono H 2008 *J. Am. Chem. Soc.* **130** 3296
- [52] de la Cruz C, Huang Q, Lynn J W, Li J Y, Ratcliff W II, Zarestky J L, Mook H A, Chen G F, Luo J L, Wang N L, Dai P C 2008 *Nature* **453** 899
- [53] Chen X H, Wu T, Wu G, Liu R H, Chen H, Fang D F 2008 *Nature* **453** 761
- [54] Huang Q, Qiu Y, Bao W, Green M A, Lynn J W, Gasparovic Y C, Wu T, Wu G, Chen X H 2008 *Phys. Rev. Lett.* **101** 257003
- [55] Rotter M, Tegel M, Johrendt D 2008 *Phys. Rev. Lett.* **101** 107006
- [56] Luo H Q, Wang Z S, Yang H, Cheng P, Zhu X Y, Wen H H 2008 *Supercond. Sci. Technol.* **21** 125014
- [57] Chen Y C, Lu X Y, Wang M, Luo H Q, Li S L 2011 *Supercond. Sci. Technol.* **24** 065004
- [58] Katayama N, Kudo K, Onari S, Mizukami T, Sugawara K, Sugiyama Y, Kitahama Y, Iba K, Fujimura K, Nishimoto N, Nohara M, Sawa H 2013 *J. Phys. Soc. Jpn.* **82** 123702
- [59] Xie T, Gong D L, Zhang W L, Gu Y H, Huesges Z, Chen D F, Liu Y T, Hao L J, Meng S Q, Lu Z L, Li S L, Luo H Q 2017 *Supercond. Sci. Technol.* **30** 095002
- [60] Ni N, Straszheim W E, Williams D J, Tanatar M A, Prozorov R, Bauer E D, Ronning F, Thompson J D, Cava R J 2013 *Phys. Rev. B* **87** 060507
- [61] Jiang S, Liu C, Cao H B, Birol T, Allred J M, Tian W, Liu L, Cho K, Krogstad M J, Ma J, Taddei K M, Tanatar M A, Hoesch M, Prozorov R, Rosenkranz S, Uemura Y J, Kotliar G, Ni N 2016 *Phys. Rev. B* **93** 054522
- [62] Jiang S, Liu L, Schütt M, Hallas A M, Shen B, Tian W, Emmanouilidou E, Shi A S, Luke G M, Uemura Y J, Fernandes R M, Ni N 2016 *Phys. Rev. B* **93** 174513
- [63] Sun Y, Ablimit A, Bao J, Jiang H, Zhou J, Cao G H 2013 *Sci. Technol. Adv. Mater.* **14** 055008
- [64] Ni N, Allred J M, Chan B C, Cava R J 2011 *Proc. Natl Acad. Sci. USA* **108** E1019
- [65] Sapkota A, Tucker G S, Ramazanoglu M, Tian W, Ni N, Cava R J, McQueeney R J, Goldman A I, Kreyssig A 2014 *Phys. Rev. B* **90** 100504(R)
- [66] Wu Q Y, Zhang C, Li Z Z, Hong W S, Liu H, Song J J, Zhao Y Z, Yuan Y H, Meng J Q 2023 *Phys. Rev. B* **108** 205136
- [67] Sato M, Kawamata T, Kobayashi Y, Yasui Y, Iida T, Suzuki K, Itoh M, Moyoshi T, Motoya K, Kajimoto R, Nakamura M, Inamura Y, Arai M 2011 *J. Phys. Soc. Jpn.* **80** 093709
- [68] Ikeuchi K, Kobayashi Y, Suzuki K, Itoh M, Kajimoto R, Bourges P, Christianson A D, Nakamura H, Machida M, Sato M 2014 *JPS Conf. Proc.* **3** 015043
- [69] Fernandes R M, Kivelson S A, Berg E 2016 *Phys. Rev. B* **93** 014511
- [70] Allred J M, Taddei K M, Bugaris D E, Krogstad M J, Lapidus S H, Chung D Y, Claus H, Kanatzidis M G, Brown D E, Kang J, Fernandes R M, Eremin I, Rosenkranz S, Chmaissem O, Osborn R 2016 *Nat. Phys.* **12** 493
- [71] Böhmer A E, Hardy F, Wang L, Wolf T, Schweiss P, Meingast C 2015 *Nat. Commun.* **6** 7911
- [72] Taddei K M, Allred J M, Bugaris D E, Lapidus S, Krogstad M, Claus H, Chung D Y, Kanatzidis M, Osborn R, Rosenkranz S, Chmaissem O 2017 *Phys. Rev. B* **95** 064508
- [73] Taddei K M, Allred J M, Bugaris D E, Lapidus S, Krogstad M J, Stadel R, Claus H, Chung D Y, Kanatzidis M G, Rosenkranz S, Osborn R, Chmaissem O 2016 *Phys. Rev. B* **93** 134510
- [74] Meier W R, Ding Q P, Kreyssig A, Bud'ko S L, Sapkota A, Kothapalli K, Borisov V, Valentí R, Batista C D, Orth P P, Fernandes R M, Goldman A I, Furukawa Y, Böhmer A E, Canfield P C 2018 *npj Quantum Mater.* **3** 5
- [75] Xie T, Wei Y, Gong D L, Fennell T, Stuhr U, Kajimoto R, Ikeuchi K, Li S L, Hu J P, Luo H Q 2008 *Phys. Rev. Lett.* **120** 267003
- [76] Xie T, Liu C, Bourdarot F, Regnault L P, Li S L, Luo H Q 2020 *Phys. Rev. Research* **2** 022018(R)
- [77] Liu C, Bourges P, Sidis Y, Xie T, He G H, Bourdarot F, Danilkin S, Ghosh H, Ghosh S, Ma X Y, Li S L, Li Y, Luo H Q 2022 *Phys. Rev. Lett.* **128** 137003
- [78] Hong W S, Song L X, Liu B, Li Z Z, Zeng Z Y, Li Y, Wu D S, Sui Q T, Xie T, Danilkin S, Ghosh H, Ghosh A, Hu J P, Zhao L, Zhou X J, Qiu X G, Li S L, Luo H Q 2020 *Phys. Rev. Lett.* **125** 117002
- [79] Lu X Y, Scherer D D, Tam D W, Zhang W L, Zhang R, Luo H Q, Harriger L W, Walker H C, Adroja D T, Andersen B M, Dai P C 2018 *Phys. Rev. Lett.* **121** 067002
- [80] Canfield P C, Bud'ko S L 2010 *Annu. Rev. Condens. Matter Phys.* **1** 27
- [81] Zhou H L, Zhang Y H, Li Y, Li S L, Hong W S, Luo H Q 2022 *Chin. Phys. B* **31** 117401
- [82] Wang L, Hardy F, Böhmer A E, Wolf T, Schweiss P, Meingast C 2016 *Phys. Rev. B* **93** 014514
- [83] Goko T, Aczel A A, Baggio-Saitovitch E, Bud'ko S L, Canfield P C, Carlo J P, Chen G F, Dai P C, Hamann A C, Hu W Z, Kageyama H, Luke G M, Luo J L, Nachumi B, Ni N, Reznik D, Sanchez-Candela D R, Savici A T, Sikes K J, Wang N L, Wiebe C R, Williams T J, Yamamoto T, Yu W, Uemura Y J 2009 *Phys. Rev. B* **80** 024508
- [84] Li L J, Luo Y K, Wang Q B, Chen H, Ren Z, Tao Q, Li Y K, Lin X, He M, Zhu Z W 2009 *New J. Phys.* **11** 025008
- [85] Ni N, Thaler A, Yan J Q, Kracher A, Colombier E, Bud'ko S L, Canfield P C, Hammahs S T 2010 *Phys. Rev. B* **82** 024519
- [86] Jiang S, Xing H, Xuan G F, Wang C, Ren Z, Feng C, Dai J

- H, Xu Z A, Cao G H 2009 *J. Phys.: Condens. Matter* **21** 382203
- [87] Hu D, Lu X Y, Zhang W L, Luo H Q, Li S L, Wang P P, Chen G F, Han F, Banjara S R, Sapkota A, Kreyssig A, Goldman A I, Yamani Z, Niedermayer C, Skoulatos M, Georgii R, Keller T, Wang P, Yu W Q, Dai P C 2015 *Phys. Rev. Lett.* **114** 157002
- [88] Kasahara S, Shibauchi T, Hashimoto K, Ikada K, Tonegawa S, Okazaki R, Ikeda H, Takeya H, Hirata K, Terashima T, Matsuda Y 2010 *Phys. Rev. B* **81** 184519
- [89] Zhang C L, Wang M, Luo H Q, Wang M Y, Liu M S, Zhao J, Abernathy D L, Maier T A, Marty K, Lumsden M D, Chi S X, Chang S, Rodriguez-Rivera J A, Lynn J W, Xiang T, Hu J P, Dai P C 2011 *Sci. Rep.* **1** 115
- [90] Wang M, Zhang C L, Lu X Y, Tan G T, Luo H Q, Song Y, Wang M Y, Zhang X T, Goremychkin E A, Perring T G, Maier T A, Yin Z P, Haule K, Kotliar G, Dai P C 2013 *Nat. Commun.* **4** 2874
- [91] Luo H Q, Lu X Y, Zhang R, Wang M, Goremychkin E A, Adroja D T, Danilkin S, Deng G C, Yamani Z, Dai P C 2013 *Phys. Rev. B* **88** 144516
- [92] Lipscombe O J, Harriger L W, Freeman P G, Enderle M, Zhang C L, Wang M Y, Egami T, Hu J P, Xiang T, Norman M R, Dai P C 2010 *Phys. Rev. B* **82** 064515
- [93] Steffens P, Lee C H, Qureshi N, Kihou K, Iyo A, Eisaki H, Braden M 2013 *Phys. Rev. Lett.* **110** 137001
- [94] Luo H Q, Wang M, Zhang C L, Lu X Y, Regnault L P, Zhang R, Li S L, Hu J P, Dai P C 2013 *Phys. Rev. Lett.* **111** 107006
- [95] Zhang C L, Song Y, Regnault L P, Su Y X, Enderle M, Kulda J, Tan G T, Sims Z C, Egami T, Si Q M, Dai P C 2014 *Phys. Rev. B* **90** 140502(R)
- [96] Song Y, Wang W Y, Zhang C L, Gu Y H, Lu X Y, Tan G T, Su Y X, Bourdarot F, Christianson A D, Li S L, Dai P C 2017 *Phys. Rev. B* **96** 184512
- [97] Song Y, Man H R, Zhang R, Lu X Y, Zhang C L, Wang M, Tan G T, Regnault L P, Su Y X, Kang J, Fernandes R M, Dai P C 2016 *Phys. Rev. B* **94** 214516
- [98] Waßer F, Park J T, Aswartham S, Wurmehl S, Sidis Y, Steffens P, Schmalzl K, Büchler B, Braden M 2019 *npj Quantum Mater.* **4** 59
- [99] Rossat-Mignod J, Regnault L P, Vettier C, Bourges P, Burlot P, Bossy J, Henry J Y, Lapertot G 1991 *Phys. C: Supercond.* **185** 86
- [100] Scalapino D J 2012 *Rev. Mod. Phys.* **84** 1383
- [101] Sidis Y, Pailhès S, Hinkov V, Fauqué B, Ulrich C, Capogna L, Ivanov A, Regnault L P, Keimer B, Bourges P 2007 *C. R. Phys.* **8** 745
- [102] Yu G, Li Y, Motoyama E M, Greven M 2009 *Nat. Phys.* **5** 873
- [103] Xie T, Gong D L, Ghosh H, Ghosh A, Soda M, Masuda T, Itoh S, Bourdarot F, Regnault L P, Danilkin S, Li S L, Luo H Q 2008 *Phys. Rev. Lett.* **120** 137001
- [104] Adroja D T, Blundell S J, Lang F, Luo H Q, Wang Z C, Cao G H 2020 *J. Phys.: Condens. Matter* **32** 435603
- [105] Inosov D S, Park J T, Bourges P, Sun D L, Sidis Y, Schneidewind A, Hradil K, Haug D, Lin C T, Keimer B, Hinkov V 2010 *Nat. Phys.* **6** 178
- [106] Liu T J, Hu J, Qian B, Fobes D, Mao Z Q, Bao W, Reehuis M, Kimber S A J, Prokes K, Matas S, Argyriou D N, Hiess A, Rotaru A, Pham H, Spinu L, Qiu Y, Thampy V, Savici A T, Rodriguez J A, Broholm C 2010 *Nat. Mater.* **9** 718
- [107] Zhao J, Rotundu C R, Marty K, Matsuda M, Zhao Y, Setty C, Bourret-Courchesne E, Hu J, Birgeneau R J 2013 *Phys. Rev. Lett.* **110** 147003
- [108] Zhang C L, Li H F, Song Y, Su Y X, Tan G T, Netherton T, Redding C, Carr S V, Sobolev O, Schneidewind A, Faulhaber E, Harriger L W, Li S L, Lu X Y, Yao D X, Das T, Balatsky A V, Brückel T, Lynn J W, Dai P C 2013 *Phys. Rev. B* **88** 064504
- [109] Wang Q, Shen Y, Pan B Y, Hao Y Q, Ma M W, Zhou F, Steffens P, Schmalzl K, Forrest T R, Abdel-Hafiez M, Chen X J, Chareev D A, Vasiliev A N, Bourges P, Sidis Y, Cao H B, Zhao J 2016 *Nat. Mater.* **15** 159
- [110] Ma M, Wang L, Bourges P, Sidis Y, Danilkin S, Li Y 2017 *Phys. Rev. B* **95** 100504(R)
- [111] Wang M, Luo H Q, Zhao J, Zhang C L, Wang M, Marty K, Chi S X, Lynn J W, Schneidewind A, Li S L, Dai P C 2010 *Phys. Rev. B* **81** 174524
- [112] Park J T, Inosov D S, Yaresko A, Graser S, Sun D L, Bourges Ph, Sidis Y, Li Y, Kim J H, Haug D, Ivanov A, Hradil K, Schneidewind A, Link P, Faulhaber E, Glavatsky I, Lin C T, Keimer B, Hinkov V 2010 *Phys. Rev. B* **82** 134503
- [113] Christianson A D, Goremychkin E A, Osborn R, Rosenkranz S, Lumsden M D, Malliakas C D, Todorov I S, Claus H, Chung D Y, Kanatzidis M G, Bewley R I, Guidi T 2008 *Nature* **456** 930
- [114] Qiu Y M, Bao W, Zhao Y, Broholm C, Stanev V, Tesanovic Z, Gasparovic Y C, Chang S, Hu J, Qian B, Fang M H, Mao Z Q 2009 *Phys. Rev. Lett.* **103** 067008
- [115] Shen S D, Zhang X W, Wo H L, Shen Y, Feng Y, Schneidewind A, Čermák P, Wang W B, Zhao J 2020 *Phys. Rev. Lett.* **124** 017001
- [116] Ma M W, Bourges P, Sidis Y, Ivanov A, Chen G F, Ren Z A, Li Y 2023 *Phys. Rev. B* **107** 184516
- [117] Harriger L W, Lipscombe O J, Zhang C L, Luo H Q, Wang M, Marty K, Lumsden M D, Dai P C 2012 *Phys. Rev. B* **85** 054511
- [118] Guo J Q, Yue L, Iida K, Kamazawa K, Chen L, Han T T, Zhang Y, Li Y 2019 *Phys. Rev. Lett.* **122** 017001
- [119] Chubukov A V, Efremov D V, Eremin I 2008 *Phys. Rev. B* **78** 134512
- [120] Maier T A, Scalapino D J 2008 *Phys. Rev. B* **78** 020514(R)
- [121] Maier T A, Graser S, Scalapino D J, Hirschfeld P 2009 *Phys. Rev. B* **79** 134520
- [122] Das T, Balatsky A V 2011 *Phys. Rev. Lett.* **106** 157004
- [123] Mazin I I, Schmalian J 2009 *Physica C* **469** 614
- [124] Richard P, Sato T, Nakayama K, Takahashi T, Ding H 2011 *Rep. Prog. Phys.* **74** 124512
- [125] Seo K, Bernevig B A, Hu J 2008 *Phys. Rev. Lett.* **101** 206404
- [126] Hirschfeld P J, Korshunov M M, Mazin I I 2011 *Rep. Prog. Phys.* **74** 124508
- [127] Wang F, Lee D H 2011 *Science* **332** 200
- [128] Parish M M, Hu J, Bernevig B A 2008 *Phys. Rev. B* **78** 144514
- [129] Onari S, Kontani H, Sato M 2010 *Phys. Rev. B* **81** 060504(R)
- [130] Onari S, Kontani H 2012 *Phys. Rev. Lett.* **109** 137001
- [131] Kontani H, Onari S 2010 *Phys. Rev. Lett.* **104** 157001
- [132] Takeuchi L, Yamakawa Y, Kontani H 2018 *Phys. Rev. B* **98** 165143
- [133] Kontani H, Tazai R, Yamakawa Y, Onari S 2021 *Adv. Phys.* **70** 355
- [134] Kim M G, Tucker G S, Pratt D K 2013 *Phys. Rev. Lett.* **110** 177002

- [135] Zhang R, Wang W Y, Maier T A, Wang M, Stone M B, Chi S, Winn B, Dai P C 2018 *Phys. Rev. B* **98** 060502(R)
- [136] Hu D, Yin Z P, Zhang W L, Ewings R A, Ikeuchi K, Nakamura M, Roessli B, Wei Y, Zhao L X, Chen G F, Li S L, Luo H Q, Haule K 2016 *Phys. Rev. B* **94** 094504
- [137] Xie T, Liu C, Fennell T, Stuhr U, Li S L, Luo H Q 2020 *Chin. Phys. B* **30** 127402
- [138] Zhang C L, Yu R, Su Y X, Song Y, Wang M Y, Tan G T, Egami T, Fernandez-Baca JA, Faulhaber E, Si Q M, Dai P C 2013 *Phys. Rev. Lett.* **111** 207002
- [139] Wang M, Yi M, Sun H L, Valdivia P, Kim M G, Xu Z J, Berlijn T, Christianson A D, Chi S X, Hashimoto M, Lu D H, Li X D, Bourret-Courchesne E, Dai P C 2016 *Phys. Rev. B* **93** 205149
- [140] Hong W S, Zhou H L, Li Z Z, Li Y, Stuhr U, Pokhriyal A, Ghosh H, Tao Z, Lu X Y, Hu J P, Li S L, Luo H Q 2023 *Phys. Rev. B* **107** 224514
- [141] Ye Z R, Zhang Y, Chen F, Xu M, Jiang J, Niu X H, Wen C H P, Xing L Y, Wang X C, Jin C Q, Xie B P, Feng D L 2014 *Phys. Rev. X* **4** 031041
- [142] Xie T, Liu C, Kajimoto R, Ikeuchi K, Li S L, Luo H Q 2022 *J. Phys.: Condens. Matter* **34** 474001
- [143] Luo H Q, Yamani Z, Chen Y C, Lu X Y, Wang M, Li S L, Maier T A, Danilkin S, Adroja D T, Dai P C 2012 *Phys. Rev. B* **86** 024508
- [144] Zhang C, Harriger L W, Yin Z P, Lü W C, Wang M, Tan G T, Song Y, Abernathy D L, Tian W, Egami T, Haule K, Kotliar G, Dai P C 2014 *Phys. Rev. Lett.* **112** 217202
- [145] Zhao J, Adroja D T, Yao D X, Bewley R, Li S L, Wang X F, Wu G, Chen X H, Dai P C 2009 *Nat. Phys.* **5** 555
- [146] Zhao J, Ratchiff W, Lynn J W, Chen G F, Luo J L, Wang N L, Hu J P, Dai P C 2008 *Phys. Rev. B* **78** 140504(R)
- [147] Harriger L W, Luo H Q, Liu M S, Frost C, Hu J P, Norman M R, Dai P C 2011 *Phys. Rev. B* **84** 054544
- [148] Harriger L W, Liu M S, Luo H Q, Ewings R A, Frost C D, Perring T G, Dai P C 2012 *Phys. Rev. B* **86** 140403(R)
- [149] Liu M S, Harriger L W, Luo H Q, Wang M, Ewings R A, Guidi T, Park H W, Haule K, Kotliar G, Hayden S M, Dai P C 2012 *Nat. Phys.* **8** 376
- [150] Lu X Y, Park J T, Zhang R, Luo H Q, Nevidomskyy A N, Si Q M, Dai P C 2014 *Science* **345** 657
- [151] Song Y, Lu X Y, Abernathy D L, Tam D W, Niedziela J L, Tian W, Luo H Q, Si Q M, Dai P C 2015 *Phys. Rev. B* **92** 180504(R)
- [152] Zhang C L, Park J T, Lu X Y, Yu R, Li Y, Zhang W L, Zhao Y, Lynn J W, Si Q M, Dai P C 2015 *Phys. Rev. B* **91** 104520
- [153] Zhang W L, Park J T, Lu X Y, Wei Y, Ma X Y, Hao L J, Dai P C, Meng Z Y, Yang Y F, Luo H Q, Li S L 2016 *Phys. Rev. Lett.* **117** 227003
- [154] Tam D W, Yin Z P, Xie Y F, Wang W Y, Stone M B, Adroja D T, Walker H C, Yi M, Dai P C 2020 *Phys. Rev. B* **102** 054430
- [155] Tam D W, Wang W Y, Zhang L, Song Y, Zhang R, Carr S V, Walker H C, Perring T G, Adroja D T, Dai P C 2019 *Phys. Rev. B* **99** 134519
- [156] Tranquada J M, Xu G, Zaliznyak I A 2014 *J. Magn. Magn. Mater.* **350** 148
- [157] Fujita M, Hiraka H, Matsuda M, Matsuura M, Tranquada J M, Wakimoto S, Xu G, Yamada K 2012 *J. Phys. Soc. Jpn.* **81** 011007
- [158] Zhu Z H, Pan B L, Nie L P, Ni J M, Yang Y X, Chen C S, Jiang C Y, Huang Y Y, Cheng E J, Yu Y J, Miao J J, Hillier A D, Chen X H, Wu T, Zhou Y, Li S Y, Shu L 2023 *The Innovation* **4** 100459
- [159] Zeng Z Y, Zhou C K, Zhou H L, Han L K, Chi R Z, Li K, Kofu M, Nakajima K, Wei Y, Zhang W L, Mazzone D G, Meng Z Y, Li S L 2024 *Nat. Phys.* **20** 1097
- [160] Sheng J M, Wang L, Jiang W R, Ge H, Zhao N, Li T T, Kofu M, Yu D H, Zhu W, Mei J W, Wang Z T, Wu L S 2024 arXiv: 2402.07730 [cond-mat.str-el]
- [161] Wu D S, Jia J J, Yang J G, Hong W S, Shu Y J, Miao T M, Yan H T, Rong H T, Ai P, Zhang X, Yin C H, Li C L, Zhang S J, Zhang F F, Yang F, Wang Z M, Zong N, Liu L J, Li R K, Wang X Y, Peng Q J, Mao H Q, Liu G D, Li S L, Luo H Q, Wu X X, Xu Z Y, Zhao L, Zhou X J 2024 *Nat. Phys.* **20** 571
- [162] Headings N S, Hayden S M, Coldea R, Perring T G 2010 *Phys. Rev. Lett.* **105** 247001
- [163] Hayden S M, Aeppli G, Mook H A, Perring T G, Mason T E, Cheong S W, Fisk Z 1996 *Phys. Rev. Lett.* **76** 1344



SPECIAL TOPIC—Correlated electron materials and scattering spectroscopy

**Spin excitation spectra of iron pnictide superconductors\***LI Zezhong<sup>1)2)</sup> HONG Wenshan<sup>1)</sup> XIE Tao<sup>3)</sup> LIU Chang<sup>1)</sup> LUO Huiqian<sup>1)†</sup><sup>1)</sup> (*Institute of Physics, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100190, China*)<sup>2)</sup> (*University of Chinese Academy of Sciences, Beijing 100049, China*)<sup>3)</sup> (*School of Physics, Sun Yat-Sen University, Guangzhou 510275, China*)

(Received 1 November 2024; revised manuscript received 20 November 2024)

**Abstract**

Spin fluctuations are often considered the most likely candidates for superconducting electron pairing media in unconventional superconductors. The iron-based superconductors provide a wide range of opportunities for studying the mechanism of unconventional superconductivity, as they have many systems with different structures and rich magnetisms. Taking the iron pnictide superconductors for example, this review summarizes the inelastic neutron scattering results of the spin excitation spectrum of iron-based superconductors, especially for their common features.

Firstly, we introduce the direct connection between the low-energy spin excitations and superconductivity, which is so called the neutron spin resonance mode. This mode widely exists in the superconducting states of all iron-based superconductors, where the resonance energy  $E_R$  is linearly proportional to the critical temperature  $T_c$ :  $E_R = 4.9k_B T_c$ , and it has a universal  $c$ -axis preferred characteristic. The in-plane dispersion of spin resonance mode is not limited by the superconducting energy gap, which is in contrast to the traditional spin exciton model. The out-of plane dispersion of spin resonance mode is determined by the Fe-As interplanar distance, indicating that the three-dimensional spin correlation effect cannot be ignored, which may be the key to clarifying the role of spin fluctuations in superconductivity.

Secondly, we summarize the energy dispersion, intensity distribution, and total fluctuating moment for high energy spin excitations. Although the Heisenberg model can roughly describe the similar dispersions in different systems based on the anisotropic in-plane nearest neighbor effective exchange couplings and the similar second nearest neighbor effective exchange coupling, the correlated Hubbard model based on itinerant magnetism can more accurately describe the spin wave behavior after degeneracy, thus the spin excitations are more likely to be understood from the perspective of itinerant magnetism. The spin excitation intensity varies greatly with energy in different systems, indicating a competitive relationship between itinerant and localized magnetic interactions. However, the total fluctuating moments are generally the same, indicating that the effective spin  $S = 1/2$ . The spin excitation bandwidth is in a range of 100–200 meV, probably is correlated with the height of As away from the Fe-Fe plane.

Finally, we make a comprehensive comparison of the spin excitations in iron-based superconductors and copper oxide superconductors. The spin excitation spectra of iron-based superconductors have much richer physics than cuprates, due to the complex physics of multiple orbitals, Fermi surfaces, and energy gaps. These phenomena lead to the diversity of spin excitations, especially the prominent three-dimensional spin correlation effect. This indicates that interlayer pairing and intra layer pairing driven by spin interactions are equally important and must be fully considered in microscopic theories of high- $T_c$  superconductivity.

**Keywords:** iron-based superconductors, high temperature superconductivity, inelastic neutron scattering, spin excitation spectrum, spin fluctuations

**PACS:** 74.70.Xa, 75.30.Gw, 78.70.Nx, 75.40.Gb**DOI:** 10.7498/aps.74.20241534**CSTR:** 32037.14.aps.74.20241534

\* Project supported by the National Key Research and Development Program of China (Grant Nos. 2023YFA1406100, 2018YFA0704200) and the Strategic Priority Research Program (B) of the Chinese Academy of Sciences (Grant Nos. XDB25000000, XDB33000000, GJTD-2020-01).

† Corresponding author. E-mail: [hqluo@iphy.ac.cn](mailto:hqluo@iphy.ac.cn)

## 铁砷化物超导体的自旋激发谱

李泽众 洪文山 谢涛 刘畅 罗会仟

### Spin excitation spectra of iron pnictide superconductors

LI Zezhong HONG Wenshan XIE Tao LIU Chang LUO Huiqian

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 74, 017401 (2025) DOI: 10.7498/aps.74.20241534

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.7498/aps.74.20241534>

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

---

## 您可能感兴趣的其他文章

### Articles you may be interested in

#### 铁基超导体的输运性质

The transport properties of iron-based superconductors

物理学报. 2021, 70(1): 017404 <https://doi.org/10.7498/aps.70.20201836>

#### 高温超导体电子结构和超导机理的角分辨光电子能谱研究

Angle-resolved photoemission spectroscopy studies on the electronic structure and superconductivity mechanism for high temperature superconductors

物理学报. 2021, 70(1): 017406 <https://doi.org/10.7498/aps.70.20201913>

#### 探索非常规高温超导体

Searching for new unconventional high temperature superconductors

物理学报. 2021, 70(1): 017101 <https://doi.org/10.7498/aps.70.20202122>

#### 铁基超导涡旋演生马约拉纳零能模

Emergent vortex Majorana zero mode in iron-based superconductors

物理学报. 2020, 69(11): 110301 <https://doi.org/10.7498/aps.69.20200717>

#### 铁基超导体中的马约拉纳零能模及其阵列构筑

Majorana zero mode and its lattice construction in iron-based superconductors

物理学报. 2024, 73(3): 030302 <https://doi.org/10.7498/aps.73.20232022>

#### 铁基超导研究中的单轴应变调控方法

Uniaxial-strain tuning method in study of iron-based superconductors

物理学报. 2024, 73(19): 197103 <https://doi.org/10.7498/aps.73.20241080>