

表面吸附K原子的多层 FeSe/SrTiO₃(001) 薄膜的抗磁响应的原位测量

陈传廷 姚钢 段明超 管丹丹 李耀义 郑浩 王世勇 刘灿华 贾金锋

In-situ measurement of diamagnetic response of potassium-adsorbed multi-layer FeSe ultrathin films on SrTiO₃(001) substrate

Chen Chuan-Ting Yao Gang Duan Ming-Chao Guan Dan-Dan Li Yao-Yi Zheng Hao Wang Shi-Yong Liu Can-Hua Jia Jin-Feng

引用信息 Citation: [Acta Physica Sinica](#), 67, 227401 (2018) DOI: 10.7498/aps.67.20181522

在线阅读 View online: <http://dx.doi.org/10.7498/aps.67.20181522>

当期内容 View table of contents: <http://wulixb.iphy.ac.cn/CN/Y2018/V67/I22>

您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

[垂直磁各向异性 L1-Mn_{1.67}Ga 超薄膜分子束外延生长与磁性研究](#)

Perpendicular magnetic properties of ultrathin L1-Mn_{1.67}Ga films grown by molecular-beam epitaxy

物理学报.2016, 65(11): 118105 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.65.118105>

[LaTiO₃\(110\) 薄膜分子束外延生长的精确控制和表面截止层的研究](#)

Precise control of LaTiO₃(110) film growth by molecular beam epitaxy and surface termination of the polar film

物理学报.2015, 64(7): 078103 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.64.078103>

[分子束外延制备的垂直易磁化 MnAl 薄膜结构和磁性](#)

Structural characterization and magnetic properties of perpendicularly magnetized MnAl films grown by molecular-beam epitaxy

物理学报.2013, 62(17): 178103 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.62.178103>

表面吸附K原子的多层FeSe/SrTiO₃(001)薄膜的抗磁响应的原位测量*

陈传廷¹⁾ 姚钢¹⁾ 段明超¹⁾ 管丹丹¹⁾ 李耀义¹⁾²⁾ 郑浩¹⁾²⁾
王世勇¹⁾²⁾ 刘灿华^{1)2)†} 贾金锋¹⁾²⁾

1) (上海交通大学物理与天文学院, 人工结构及量子调控教育部重点实验室, 上海 200240)

2) (人工微结构科学与技术协同创新中心, 南京 210093)

(2018年8月12日收到; 2018年9月14日收到修改稿)

SrTiO₃(001)单晶表面上生长的单层FeSe薄膜显示出了超乎寻常的高温超导电性, 其超导增强机制的一个重要因素是电子由衬底转移到了单层FeSe薄膜当中. 基于此认识, 研究者在吸附了钾(K)原子的多层FeSe薄膜表面上观察到了类似超导能隙的隧穿能谱和光电子能谱. 但这种自上而下的电子掺入方式在多层FeSe薄膜表面上可能引起的高温超导电性, 还缺乏零电阻或迈斯纳效应等物性测量实验的直接证实. 本研究利用自行研制的一台特殊的多功能扫描隧道显微镜, 在生长于SrTiO₃(001)衬底上的多层FeSe薄膜表面上, 不但观察到了超导能隙随K吸附量的变化, 而且利用原位双线圈互感测量技术, 成功地观察到了该薄膜的抗磁响应, 并由此确定了该薄膜样品呈现迈斯纳效应的超导转变温度为23.9 K. 其穿透深度随温度的变化呈二次幂指数关系, 表明该体系的超导序参量很可能具有S[±]配对对称性.

关键词: 多层FeSe薄膜, 抗磁响应, 迈斯纳效应, 穿透深度

PACS: 74.78.Bz, 81.15.Hi, 74.25.Ha, 68.37.Ef

DOI: 10.7498/aps.67.20181522

1 引言

近年的研究发现, 在SrTiO₃(001)单晶表面上生长的单层FeSe薄膜(单层FeSe/STO)具有高达65—109 K的超导转变温度(T_c)^[1-5], 这比FeSe体相的 T_c (约9 K)有了极大程度的提升^[6]. 该体系的界面超导增强机制引起了广泛的研究兴趣, 各种因素, 包括FeSe/STO界面增强的电子-声子耦合^[7-10]、自旋涨落^[11-13]、衬底对FeSe薄膜晶格的拉伸应力^[11,13,14]以及衬底对FeSe薄膜的电子掺杂效应^[15-17]等, 都受到了研究者的关注, 但至今尚未有定论. 在此基础上, 研究者们也在尝试着寻找其他类似的高 T_c 的FeSe衍生材料, 其中的代表性体系之一是在多层FeSe

薄膜上吸附K原子(K/FeSe). 由于K原子的电负性很强, 很容易将一部分电子转移给FeSe薄膜, 因而有可能诱导出高温超导. 在最近的多个角分辨光电子能谱(angle-resolved photoemission spectroscopy, ARPES)和扫描隧道显微镜(scanning tunneling microscope, STM)的实验中^[18-23], 的确在K/FeSe体系的费米能级(E_F)处观察到了一个类超导能隙(superconducting-like energy gap), 而且该能隙大小随着K覆盖量的增加先增大后饱和或者减小, 能隙闭合的最高温度约为44—46 K^[18,20,23]. 但是, K/FeSe体系的超导特性尚未在零电阻或迈斯纳效应等物性测量实验当中得到证实. 其主要原因在于吸附在多层FeSe薄膜表面的K原子的化学活性太强, 样品一旦从超高真空腔中取出, 立刻会被大气污染, 而且也无法找

* 国家重点基础研究发展计划(批准号: 2016YFA0300403, 2016YFA0301003)、国家自然科学基金(批准号: 11521404, 11574202, 11634009, 11655002, 11504230, U1632102)和上海市科委科技基金(批准号: 15JC1402300, 16DZ2260200)资助的课题.

† 通信作者. E-mail: canhualiu@sjtu.edu.cn

到合适的保护层覆盖其上. 所以, 对于以往只能对各种超导薄膜材料进行非原位测量的物性测量手段, 都无法应用于对 K/FeSe 的电学或磁学特性的测量.

鉴于此, 本研究利用独自研发的一套特殊的扫描隧道显微镜 (STM Plus, STM+), 成功地对一块表面吸附了 K 原子的多层 FeSe 薄膜样品进行了一系列系统的研究, 不但用 STM 观察到了该 K/FeSe 样品的成膜质量和 K 原子在表面的分布状况, 用 STS (scanning tunneling spectroscopy) 测量到了类超导能隙随着 K 原子覆盖量的变化, 而且还用原位双线圈互感测量技术, 观测到了该样品起源于迈斯纳效应的抗磁响应, 并由此确定了该样品的 $T_c = 23.9$ K, 其超导序参量可能具有 S^\pm 配对对称性.

2 实验

本研究的多层 FeSe 薄膜是用分子束外延技术在掺杂 Nb (0.7 wt%) 的 STO (001) 单晶衬底表面上生长的. 对 STO 单晶 (尺寸为 $10\text{ mm} \times 2.8\text{ mm} \times 0.5\text{ mm}$) 通直流电加热至 $550\text{ }^\circ\text{C}$ 除气约 10 h, 再将温度升至 $980\text{ }^\circ\text{C}$, 并在富 Se 氛围下退火约 30 min, 随后将衬底温度降至 $350\text{ }^\circ\text{C}$ 进行多层 FeSe 薄膜的生长^[24]. FeSe 薄膜是通过高纯度的 Se (99.999%) 和 Fe (99.995%) 共沉积的形式 (束流比约为 20 : 1) 生长的. 通过反射式高能电子衍射 (reflection high-energy electron diffraction, RHEED) 监控薄膜的生长, 得到生长一层 FeSe 薄膜对应的衍射条纹的强度变化时间为 12.5 min. 本实验所用 FeSe 薄膜连续生长了 44 min, 因而其名义厚度为 3.5 层. FeSe 薄膜生长结束后被加热至 $450\text{ }^\circ\text{C}$ 退火 1 h, 以进一步去除多余的 Se 原子, 提高 FeSe 薄膜的平整度和结晶质量. 将多层 FeSe 薄膜样品在液氦环境中的 STM 样品台上放置足够长时间后, 快速 (时间短于半分钟) 传至室温环境下的生长腔中进行 1 min 时长的 K 吸附 (保守估计样品温度可保持在 150 K 以下), 然后再快速传回至 STM 样品台进行 STM 及原位双线圈交流互感的测量. K 原子的吸附速率约为 0.075 ML/min, 1 ML (monolayer) 为 FeSe 最上层 Se 原子的面密度.

本研究所用的仪器设备是自行设计研制的一台特殊的扫描隧道显微镜 (STM Plus, STM+)^[5,25,26]. 与普通 STM 相比, STM+ 的压电陶瓷扫描

管具有耳塞孔型排列的四个电极, 配合相应的耳塞插杆型四电极探针托, 不但具备正常的 STM 和 STS 的测量功能, 也可用于原位四探针电输运测量和双线圈交流互感测量. 图 1 (a) 的下半部是自行设计的线圈托 (coil holder), 其下端是耳塞插杆型排列的四电极插头 (earphone-like electrode plug), 顶端是用绝缘胶固定的一段长 8 mm、直径 1.6 mm 的陶瓷棒, 用于缠绕线圈. 图 1 (b) 是本实验中用的差分式线圈的缠绕示意图及其工作原理图. 激励线圈 (drive coil) 约 300 圈, 绕在陶瓷棒中段, 其两端相隔大致同样距离处缠绕着相互反向串联的感应线圈 (pick-up coil), 各约 10 圈.

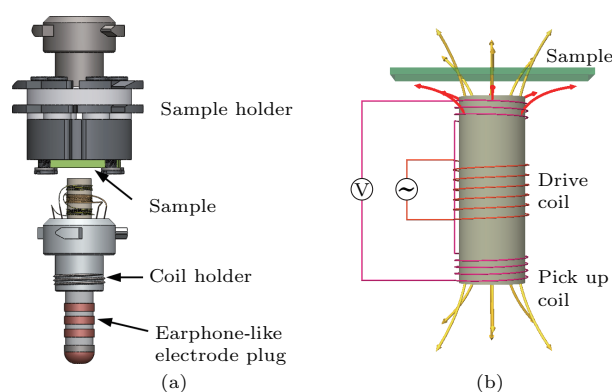


图 1 双线圈互感测量 (a) 装置示意图; (b) 原理图
Fig. 1. Schematic diagrams of (a) the two-coil mutual inductance measurement instrument and (b) its measurement illustration.

实验中, 将感应线圈组的一端靠近样品, 如果样品处于高温下的正常态, 在激励线圈中施加的交流电流可在感应线圈组中产生方向相反、大小 (近似) 相等的感应电动势; 而当温度降低, 样品进入超导态后, 两个感应线圈中产生的感应电动势的平衡将因为超导体对磁场的排斥 (迈斯纳效应) 而被破坏, 从而导致两个感应线圈的总输出电压出现净增加. 测量中, 感应线圈中的感应电动势与激励线圈中输入电流之间相位差的期待值为 90° , 但由于激励线圈和感应线圈之间存在着寄生电容, 会发生寄生相移, 所以实际相位差为 $89^\circ \pm 5^\circ$. 线圈托由 STM 压电陶瓷滑块驱动, 可以使其顶部轻触到样品表面, 以便提升超导抗磁信号的探测灵敏度, 但又不会大范围破坏薄膜样品.

3 实验结果与讨论

STM+ 的一大优势是可以对同一块样品进行原位的结构表征与物性测量. 在实验中, 首先用

STM观察了所生长的FeSe薄膜的质量以及之后在其表面上吸附的K原子的空间分布. 图2(a)是本次实验中生长的FeSe薄膜的典型的STM图, 之后的所有实验都在该样品上进行. 图中所有的台阶高度均为约0.55 nm, 对应于1个单元层(unit-cell layer, UC) FeSe薄膜的厚度. 具有原子分辨率的STM图显示薄膜的质量很高, 各种在单层FeSe薄膜上常见的缺陷在多层FeSe薄膜上并不多见(图2(b)). FeSe薄膜表面呈现出许多无规则的畴界, 其两侧是不同生长取向的畴区, 与文献报道一致^[17,27]. 薄膜各个平台的平整度都很高, 适合进一步进行K原子的吸附及其结构与物性的测量. 图2(c)–(h)是该FeSe薄膜样品表面上吸附了不同量的K原子后的STM图. 当K原子覆盖量(K coverage, K_c)非常低(小于0.23 ML)时, 每个K原子均呈现一个大小和高度相似的亮点. 随

着 K_c 的不断升高, K原子从一开始稀疏无序的均匀分布(0.05 ML, 图2(c))逐渐出现短程有序分布(0.11 ML, 图2(d)), 再进而形成局域性分布的 $\sqrt{5} \times \sqrt{5}$ 和 2×2 表面超结构(0.17 ML), 分别如图2(e)中蓝色与红色小点所示. 这一变化过程与文献报道一致^[19,22,23]. $\sqrt{5} \times \sqrt{5}$ 和 2×2 超结构是K原子在FeSe薄膜上单层密致排布的结果, 分别对应于 $K_c = 0.20$ ML和 $K_c = 0.25$ ML. 在 K_c 达到0.22 ML时, 从图2(f)的STM图可见, 无法再分辨出所有的单个K原子了, 这说明K原子已经向面外方向堆积起来, 形成了非晶结构的K原子膜. 虽然是非晶结构, 但K原子膜还是比较平整的, 其高度起伏不大(<150 pm), 小于台阶高度. 从不同位置的大范围STM图(0.28 ML, 图2(g)–(h))也可见, K原子膜非常均匀地覆盖在FeSe薄膜表面.

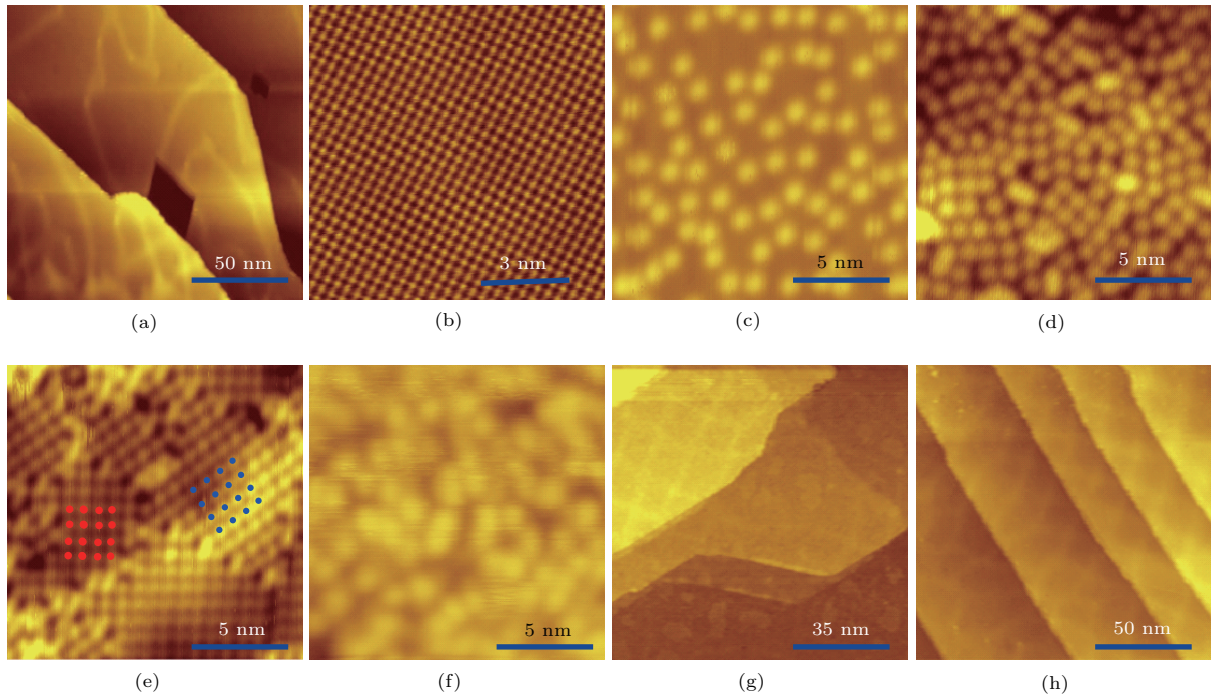


图2 STO衬底上生长的多层FeSe薄膜在吸附了不同覆盖量的K后的STM图, $I = 100$ pA (a) $K_c = 0$, $V_s = 2.6$ V; (b) $K_c = 0$, $V_s = 1$ V; (c) $K_c = 0.05$ ML, $V_s = 2.0$ V; (d) $K_c = 0.11$ ML, $V_s = 2.5$ V; (e) $K_c = 0.17$ ML, $V_s = 1.1$ V, 蓝点和红点分别标示出了 $\sqrt{5} \times \sqrt{5}$ 和 2×2 超结构的部分区域; (f) $K_c = 0.22$ ML, $V_s = 1.9$ V; (g) $K_c = 0.28$ ML, $V_s = 2.0$ V; (h) $K_c = 0.28$ ML, $V_s = 2.0$ V

Fig. 2. STM images of the K-adsorbed multi-layer FeSe film grown on STO surface at different K_c , $I = 100$ pA: (a) $K_c = 0$, $V_s = 2.6$ V; (b) $K_c = 0$, $V_s = 1$ V; (c) $K_c = 0.05$ ML, $V_s = 2.0$ V; (d) $K_c = 0.11$ ML, $V_s = 2.5$ V; (e) $K_c = 0.17$ ML, $V_s = 1.1$ V, the blue and red dots denote local $\sqrt{5} \times \sqrt{5}$ and 2×2 superstructures, respectively; (f) $K_c = 0.22$ ML, $V_s = 1.9$ V; (g) $K_c = 0.28$ ML, $V_s = 2.0$ V; (h) $K_c = 0.28$ ML, $V_s = 2.0$ V.

图3总结了不同K覆盖量下用STS测量到的FeSe薄膜在费米面附近的 dI/dV 数据及其分析结果. 图3(a)展示的是在一块 $15 \text{ nm} \times 15 \text{ nm}$ 区域

内的不同位置处所采集到的 dI/dV 谱取平均的结果. 当多层FeSe薄膜表面没有吸附K原子或者K原子的覆盖量还很低($K_c \leq 0.05$ ML)时, dI/dV 谱

并未出现能隙。当覆盖量达到0.1 ML及以上后, dI/dV 谱在费米面附近出现能隙, 不过其相干峰并不是很明显, 只能从谱线突拐处判断相干峰的大致位置。通过多项式拟合出背底并以其进行归一化后, 可更为清晰地观察到相干峰, 如图 3(b) 所示。将两相干峰能量大小的平均值取为能隙的大小, 则如图 3(c) 所示, 随着K覆盖量的增加, 能隙先略微增大, 在 $K_c = 0.22$ ML 处达到最大值 12.2 meV, 随后在 0.28 ML 处又下降至 10.5 meV。从这一系列的

STS数据分析得到的结果与已有的文献报道非常相似 [19,22,23]。但需要指出的是, 由于本实验中生长制备出的 FeSe 薄膜的层厚不均, 未能明确地确定图 3 中在不同K覆盖量下测量到的 dI/dV 谱线所对应的 FeSe 薄膜的确切层厚。考虑到即便是同样的K覆盖量, 不同层厚的 FeSe 薄膜所具有的能隙大小可能不同 [19,22,23], 所以图 3(c) 所示的能隙随K覆盖量的变化趋势, 很难与已有文献报道进行严格的定量比较。

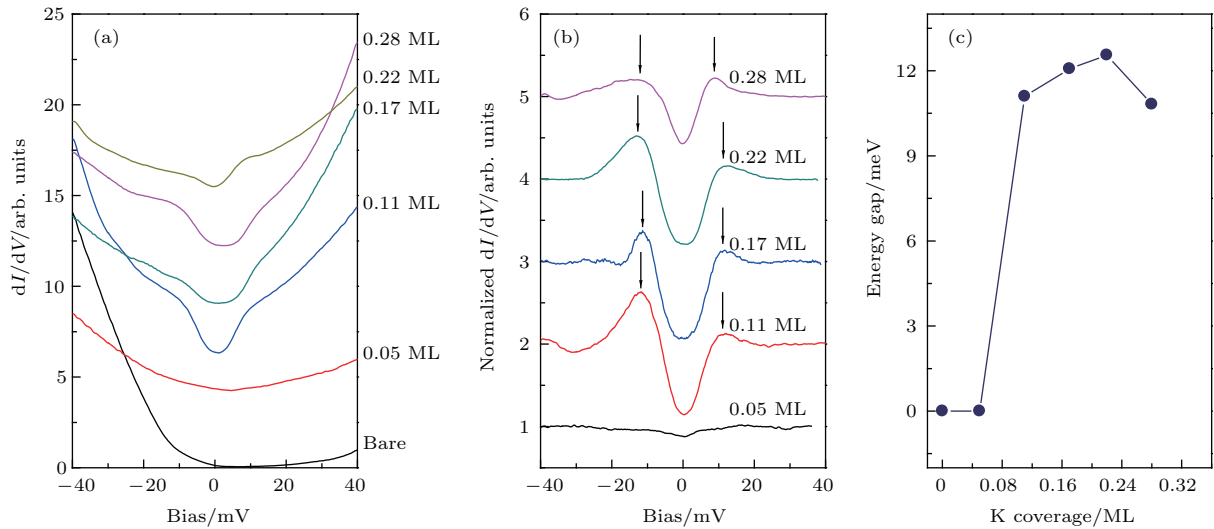


图3 在吸附了不同K覆盖量的多层 FeSe 薄膜表面上测得的 dI/dV 数据及其分析结果 (a) 不同 K_c 时 FeSe 薄膜样品表面的 dI/dV 谱, 每条谱线是对不同位置的 5—8 条原始谱线数据的平均结果, 谱线沿垂直方向做了适当的平移; (b) 将 (a) 图中的 dI/dV 谱通过多项式拟合背底并归一化后的结果, 箭头表示相干峰的位置; (c) 超导能隙随 K 覆盖量的变化

Fig. 3. (a) dI/dV spectra of the K-adsorbed multi-layer FeSe film at different K_c , each spectrum is averaged from 5–8 spectra taken at different position, the spectra are vertically shifted for a better view; (b) dI/dV spectra after renormalizing to a polynomial background, arrows denotes the energy positions of the coherence peaks; (c) variation of the energy gap determined from the energy positions of the coherence peaks as a function of K coverage.

由于在 $K_c = 0.22$ ML 时, K 原子在 FeSe 表面上覆盖得非常致密, 研究者们普遍认为在这个覆盖度左右, K 原子对 FeSe 的电子掺入量基本上达到了极值, 所以我们选择了在该覆盖度下对表面吸附 K 原子的多层 FeSe 薄膜进行双线圈交流互感的原位测量。图 4(a) 中的蓝色与黑色点线分别是感应线圈输出电动势 V_p 的实部 ReV_p 与虚部 ImV_p 随温度的变化关系。 ImV_p 中出现的峰值可能起源于与涡旋-反涡旋对的释放机制相关的能量耗散 [28,29]。为了清晰地获取超导转变温度, ReV_p 曲线在拐点附近的区域被局部放大, 如图 4(b) 所示。在相对高温的区域 (高于 23.9 K), ReV_p 几乎没有变化, 而当温度下降至 23.9 K 之后, ReV_p 开始出现明显的上升。如前所述, 当超导样品的温度下降至 T_c 以

下时, 由迈斯纳效应引起的抗磁屏蔽作用将极大地改变激励线圈在样品附近产生的磁力线的分布, 使得对称反绕于激励线圈两端的两个感应线圈中的感应电动势的 (相对) 平衡开始被打破, 从而导致所测量的 ReV_p 开始上升。因此, 图 4(a) 及其局部放大的图 4(b) 中观察到的 ReV_p 值随温度下降而明显上升的现象, 即反映出了源于迈斯纳效应的超导抗磁响应, 该样品的 T_c 值也由此而确定为 23.9 K。

通过以上的双线圈交流互感测量, 我们成功地从实验上证实了吸附 K 原子的多层 FeSe 薄膜样品的超导特性。不过, 该样品的超导转变温度虽然比之 FeSe 体材料的要高出了近两倍, 但与 STM 及 ARPES 等实验中观察到的最高的能隙闭合温度

(44—46 K) 相比^[18,20], 还是有明显的差距. 产生这方面差异的原因, 首先是无法排除样品生长条件的不同而导致样品的超导转变温度不同的可能性, 包括STO衬底的处理方式, FeSe薄膜样品的退火温度与时间, K原子的吸附时间、温度与均匀度等, 都有可能影响FeSe薄膜的质量及有效电子密度. 其次, 在双线圈交流互感测量当中, 出现信号上升时对应的是超导电流的出现, 因此它所给出的超导转变温度在电运输测量中对应的是出现零电阻时

的超导转变温度, 而非起始转变温度; 对于STM或ARPES等电子谱上能隙闭合所对应的温度, 则往往是起始转变温度. 对于二维超导体而言, 其零电阻转变温度可能会比起始转变温度有明显的降低. 比如, 在非原位测量到的单层FeSe薄膜的电运输测量中^[1,2], 就发现零电阻和起始转变温度分别为23.5 K和40.2 K, 这两者之间的相差值与本次实验所发现 T_c 和ARPES所观察到的能隙闭合温度间的差值相仿.

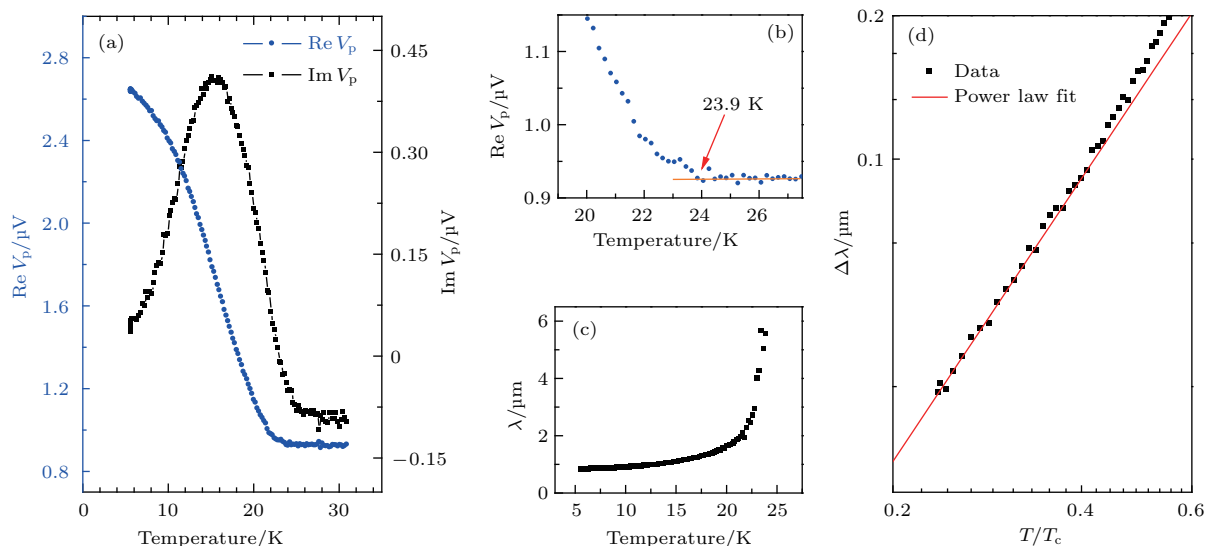


图4 $K_c = 0.22$ ML时多层FeSe薄膜的双线圈交流互感测量结果 (a) 在样品变温的过程中测量到的感应线圈两端的输出电压的实部($\text{Re}V_p$)和虚部($\text{Im}V_p$); (b) 局部放大后的 $\text{Re}V_p(T)$, 由此得 $T_c \sim 23.9$ K; (c) 由(a)图中的数据计算得到的不同温度下的伦敦穿透深度 λ ; (d) 不同温度下的 λ 与零温时 λ 之间的差值在低温段随温度的变化关系; 在指数坐标中, 其关系成线性曲线; 红色曲线是用幂指数函数拟合 $T/T_c < 0.4$ 范围内的数据的结果

Fig. 4. Two-coil mutual inductance measurement results of the K-adsorbed multi-layer FeSe film at $K_c = 0.22$ ML: (a) Temperature dependence of the real ($\text{Re}V_p$) and imaginary part ($\text{Im}V_p$) of the output voltage in the pick-up coil; (b) zoom-in of $\text{Re}V_p(T)$ showing $T_c \sim 23.9$ K; (c) temperature dependence of London penetration depth λ calculated from the data in (a); (d) low-temperature variation of $\Delta\lambda(T)$, the difference between $\lambda(T)$ and $\lambda(0)$, displayed in logarithmic coordinates. The red line is a polynomial fitting result within the temperature range of $T/T_c < 0.4$.

由图4(a)所示的 $\text{Re}V_p(T)$ 和 $\text{Im}V_p(T)$ 两组数据, 套用无限大尺寸模型下的计算公式^[30], 可得到超导样品的穿透深度 λ 随温度变化的曲线, 结果如图4(c)所示. 在本实验中, 线圈的直径是1.6 mm, 而FeSe薄膜的面内尺寸是2.8 mm \times 6 mm, 所以这就导致计算出来的 λ 值偏大. 但是它们之间的相对值(相对于零温下的穿透深度 λ_0)仍是正确的. 穿透深度在低温段的演化关系, 往往与超导体的配对对称性相关. 为此, 我们将穿透深度的变化量 $\Delta\lambda = \lambda(T) - \lambda_0$, 随温度变化的关系展示在对数坐标上, 可发现它们具有非常明确的幂指数关系, 如图4(d)所示. 若选取温度范围在 $T/T_c < 0.4$ 的数据进行幂指数函数的拟合^[31,32], $\Delta\lambda \propto (T/T_c)^n$,

可得到指数参数为 $n = 1.972$, 非常接近于2. 以往的研究表明^[33,34], 对于传统的S波超导体, 其穿透深度在低温区的幂指数关系是 $n > 3$, 只有当出现磁性杂质散射时, 其低温演化才会渐进成二次幂指数关系; 而对于 S^\pm 波超导体或者D波超导体, 若是杂质散射明显, 处于脏极限(dirty limit)状态, 即便不存在磁性杂质, 其穿透深度与温度之间在低温段亦是二次幂指数关系. 对于表面吸附K原子的多层FeSe薄膜而言, 其杂质散射中心主要是失去了一部分电子的 K^+ 离子, 这是没有磁性的; 同时, 也没有任何研究表明该体系的能隙结构上具有D波节点. 因此, 其穿透深度在低温区的二次幂指数变化关系, 只能是由于该体系的超

导配对函数具有 S^\pm 波对称性,且处于脏极限状态.值得一提的是,在与单层FeSe/STO体系以及吸附K的多层FeSe薄膜具有非常相似的电子能带结构和费米面(仅在布里渊区的 M 点具有电子型能带)的 $(\text{Li}_{1-x}\text{Fe}_x)\text{OHFe}_{1-y}\text{Zn}_y\text{Se}$ 体系中, Du等^[35]通过详细分析该物质表面的磁性与非磁性杂质散射所引发的准粒子干涉(quasi-particle interference),得出该体系也是 S^\pm 波超导体.这似乎表明,对于以不同方式接受电子掺入并使得超导转变温度得以提升的各种FeSe层状结构体系,其超导特性具有很强的共性.不过,对比单层FeSe薄膜所具有的65—100 K的超导转变温度,掺入电子的多层FeSe薄膜的超导转变温度还是明显偏低的,这表明对于单层FeSe薄膜而言,电子转移并非是其界面超导增强机制的惟一因素.

4 结 论

本研究利用自行研制的STM+,对表面吸附了K原子的多层STO/FeSe薄膜的超导电性进行了一系列的原位测量.STS测量结果表明,超导能隙随着K原子吸附量的增加先增大,随后又稍有下降.原位双线圈互感测量结果则表明,该样品在温度下降到23.9 K时表现出明显的抗磁响应.由此,我们确定了该样品的超导转变温度,从而从物性测量的角度首次证实了表面吸附K原子的多层FeSe薄膜的超导特性.同时,从抗磁响应数据算得的穿透深度随着温度变化在低温段显示出二次幂指数关系,这说明该体系的序参量很可能具有 S^\pm 配对对称性.

参考文献

- [1] Wang Q Y, Li Z, Zhang W H, Zhang Z C, Zhang J S, Li W, Ding H, Ou Y B, Deng P, Chang K, Wen J, Song C L, He K, Jia J F, Ji S H, Wang Y Y, Wang L L, Chen X, Ma X C, Xue Q K 2012 *Chin. Phys. Lett.* **29** 037402
- [2] Zhang W H, Sun Y, Zhang J S, Li F S, Guo M H, Zhao Y F, Zhang H M, Peng J P, Xing Y, Wang H C, Fujita T, Hirata A, Li Z, Ding H, Tang C J, Wang M, Wang Q Y, He K, Ji S H, Chen X, Wang J F, Xia Z C, Li L, Wang Y Y, Wang J, Wang L L, Chen M W, Xue Q K, Ma X C 2014 *Chin. Phys. Lett.* **31** 017401
- [3] Zhang Z, Wang Y H, Song Q, Liu C, Peng R, Moler K A, Feng D, Wang Y 2015 *Sci. Bull.* **60** 1301
- [4] Sun Y, Zhang W, Xing Y, Li F, Zhao Y, Xia Z, Wang L, Ma X, Xue Q K, Wang J 2014 *Sci. Rep.* **4** 6040
- [5] Ge J F, Liu Z L, Liu C, Gao C L, Qian D, Xue Q K, Liu Y, Jia J F 2015 *Nature Mater.* **14** 285
- [6] Hsu F C, Luo J Y, Yeh K W, Chen T K, Huang T W, Wu P M, Lee Y C, Huang Y L, Chu Y Y, Yan D C, Wu M K 2008 *Proc. Natl. Acad. Sci. U. S. A.* **105** 14262
- [7] Xiang Y Y, Wang F, Wang D, Wang Q H, Lee D H 2012 *Phys. Rev. B* **86** 134508
- [8] Lee J J, Schmitt F T, Moore R G, Johnston S, Cui Y T, Li W, Yi M, Liu Z K, Hashimoto M, Zhang Y, Lu D H, Devereaux T P, Lee D H, Shen Z X 2014 *Nature* **515** 245
- [9] Coh S, Cohen M L, Louie S G 2015 *New J. Phys.* **17** 073027
- [10] Tian Y C, Zhang W H, Li F S, Wu Y L, Wu Q, Sun F, Zhou G Y, Wang L, Ma X, Xue Q K, Zhao J 2016 *Phys. Rev. Lett.* **116** 107001
- [11] Tan S, Zhang Y, Xia M, Ye Z, Chen F, Xie X, Peng R, Xu D, Fan Q, Xu H, Jiang J, Zhang T, Lai X, Xiang T, Hu J, Xie B, Feng D 2013 *Nature Mater.* **12** 634
- [12] Wang Q, Zhang W, Chen W, Xing Y, Sun Y, Wang Z, Mei J W, Wang Z, Wang L, Ma X C, Liu F, Xue Q K, Wang J 2017 *2D Mater.* **4** 034004
- [13] Cao H Y, Tan S, Xiang H, Feng D L, Gong X G 2014 *Phys. Rev. B* **89** 014501
- [14] Peng R, Shen X P, Xie X, Xu H C, Tan S Y, Xia M, Zhang T, Cao H Y, Gong X G, Hu J P, Xie B P, Feng D L 2014 *Phys. Rev. Lett.* **112** 107001
- [15] Zhang W, Li Z, Li F, Zhang H, Peng J, Tang C, Wang Q, He K, Chen X, Wang L, Ma X, Xue Q K 2014 *Phys. Rev. B* **89** 060506
- [16] He S, He J, Zhang W, Zhao L, Liu D, Liu X, Mou D, Ou Y B, Wang Q Y, Li Z, Wang L, Peng Y, Liu Y, Chen C, Yu L, Liu G, Dong X, Zhang J, Chen C, Xu Z, Chen X, Ma X, Xue Q, Zhou X J 2013 *Nature Mater.* **12** 605
- [17] Bang J, Li Z, Sun Y Y, Samanta A, Zhang Y Y, Zhang W, Wang L, Chen X, Ma X, Xue Q K, Zhang S B 2013 *Phys. Rev. B* **87** 220503
- [18] Miyata Y, Nakayama K, Sugawara K, Sato T, Takahashi T 2015 *Nature Mater.* **14** 775
- [19] Tang C, Zhang D, Zang Y, Liu C, Zhou G, Li Z, Zheng C, Hu X, Song C, Ji S, He K, Chen X, Wang L, Ma X, Xue Q K 2015 *Phys. Rev. B* **92** 180507
- [20] Wen C H, Xu H C, Chen C, Huang Z C, Lou X, Pu Y J, Song Q, Xie B P, Abdel Hafiez M, Chareev D A, Vasiliev A N, Peng R, Feng D L 2016 *Nature Commun.* **7** 10840
- [21] Song C L, Zhang H M, Zhong Y, Hu X P, Ji S H, Wang L, He K, Ma X C, Xue Q K 2016 *Phys. Rev. Lett.* **116** 157001
- [22] Tang C, Liu C, Zhou G, Li F, Ding H, Li Z, Zhang D, Li Z, Song C, Ji S, He K, Wang L, Ma X, Xue Q K 2016 *Phys. Rev. B* **93** 020507
- [23] Zhang W H, Liu X, Wen C H, Peng R, Tan S Y, Xie B P, Zhang T, Feng D L 2016 *Nano Lett.* **16** 1969
- [24] Zhang M L, Ge J F, Duan M C, Yao G, Liu Z L, Guan D D, Li Y Y, Qian D, Liu C H, Jia J F 2016 *Acta Phys. Sin.* **65** 127401 (in Chinese) [张马淋, 葛剑峰, 段明超, 姚钢, 刘志龙, 管丹丹, 李耀义, 钱冬, 刘灿华, 贾金锋 2016 物理学报 **65** 127401]

- [25] Duan M C, Liu Z L, Ge J F, Tang Z J, Wang G Y, Wang Z X, Guan D, Li Y Y, Qian D, Liu C, Jia J F 2017 *Rev. Sci. Instrum.* **88** 073902
- [26] Ge J F, Liu Z L, Gao C L, Qian D, Liu C, Jia J F 2015 *Rev. Sci. Instrum.* **86** 053903
- [27] Li Z, Peng J P, Zhang H M, Zhang W H, Ding H, Deng P, Chang K, Song C L, Ji S H, Wang L, He K, Chen X, Xue Q K, Ma X C 2014 *J. Phys. Condens. Matter* **26** 265002
- [28] Hebard A F, Fiory A T 1980 *Phys. Rev. Lett.* **44** 291
- [29] Leemann C, Lerch P, Racine G, Martinoli P 1986 *Phys. Rev. Lett.* **56** 1291
- [30] Turneaure S J, Ulm E R, Lemberger T R 1996 *J. Appl. Phys.* **79** 4221
- [31] Kogan V G, Prozorov R, Mishra V 2013 *Phys. Rev. B* **88** 224508
- [32] Cho K, Kończykowski M, Teknowijoyo S, Tanatar M A, Liu Y, Lograsso T A, Straszheim W E, Mishra V, Maiti S, Hirschfeld P J, Prozorov R 2016 *Sci. Adv.* **2** e1600807
- [33] Cho K, Fente A, Teknowijoyo S, Tanatar M A, Joshi K R, Nusran N M, Kong T, Meier W R, Kaluarachchi U, Guillamón I, Suderow H, Bud'ko S L, Canfield P C, Prozorov R 2017 *Phys. Rev. B* **95** 100502
- [34] Prozorov R, Kogan V G 2011 *Rep. Prog. Phys.* **74** 124505
- [35] Du Z, Yang X, Altenfeld D, Gu Q, Yang H, Eremin I, Hirschfeld Peter J, Mazin I I, Lin H, Zhu X, Wen H H 2017 *Nature Phys.* **14** 134

In-situ measurement of diamagnetic response of potassium-adsorbed multi-layer FeSe ultrathin films on SrTiO₃(001) substrate*

Chen Chuan-Ting¹⁾ Yao Gang¹⁾ Duan Ming-Chao¹⁾ Guan Dan-Dan¹⁾ Li Yao-Yi¹⁾²⁾
Zheng Hao¹⁾²⁾ Wang Shi-Yong¹⁾²⁾ Liu Can-Hua^{1)2)†} Jia Jin-Feng¹⁾²⁾

1) (Key Laboratory of Artificial Structures and Quantum Control (Ministry of Education), Department of Physics and Astronomy, Shanghai Jiao Tong University, Shanghai 200240, China)

2) (Collaborative Innovation Center of Advanced Microstructures, Nanjing 210093, China)

(Received 12 August 2018; revised manuscript received 14 September 2018)

Abstract

A single-unit-cell layer FeSe ultrathin film grown on SrTiO₃(001) substrate exhibits remarkable high-temperature superconductivity, which has aroused intensive research interest. Electron transfer from the substrate to the FeSe layer has been shown to play an indispensable role in enhancing the extraordinary superconductivity. With this idea, researchers have tried to search for new high-temperature superconducting material systems including K-adsorbed multi-layer FeSe ultrathin films, on which superconducting-like energy gaps have been observed with scanning tunneling spectroscopy and photoelectron spectroscopy. However, the high-temperature superconductivity of the multi-layer FeSe ultrathin films has not yet been confirmed by directly observing the zero resistance or Meissner effect. With a self-developed multi-functional scanning tunneling microscope (STM+), which enables not only usual STM functionality, but also *insitu* two-coil mutual inductance measurement, we successfully observe the diamagnetic response of a K-adsorbed multilayer FeSe ultrathin film grown on a SrTiO₃(001) substrate, and thus determine its transition temperature to be 23.9 K. Moreover, we calculate the penetration depth of the film from the measured results and find that its low-temperature behavior exhibits a quadratic variation, which strongly indicates that the order parameter of the superconducting K-adsorbed multi-layer FeSe ultrathin film has an S[±] pairing symmetry.

Keywords: multi-layer FeSe ultrathin film, diamagnetic response, Meissner effect, penetration depth

PACS: 74.78.Bz, 81.15.Hi, 74.25.Ha, 68.37.Ef

DOI: 10.7498/aps.67.20181522

* Project supported by the National Basic Research Program of China (Grant Nos. 2016YFA0300403, 2016YFA0301003), the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 11521404, 11574202, 11634009, 11655002, 11504230, U1632102), and the Funds of Shanghai Committee of Science and Technology, China (Grant Nos. 15JC1402300, 16DZ2260200).

† Corresponding author. E-mail: canhualiu@sjtu.edu.cn