

铁基超导体中的向列自旋关联和轨道选择自旋激发*

郭婷¹⁾ 鲁兴业^{1)†}

1) (北京师范大学, 物理与天文学院, 高等量子研究中心, 北京 100875)

在铁基超导的研究中, 本征自旋激发谱是理解体系内磁关联、电子向列性和反铁磁涨落之间相互作用的实验基础, 也是构建超导微观自旋模型的关键. 近年来, 针对多个铁基超导体体系退孪晶样品开展的非弹性中子散射实验在这一课题上取得了一系列进展. 在低能区, 实验表明起源于带间散射的低能自旋激发和自旋共振峰具有两重旋转对称性, 这一发现为具有 (d_{yz}) 轨道选择性的超导电性提供了进一步的实验证据. 在 高能区, 对退孪晶 BaFe_2As_2 、 NaFeAs 、 FeSe 体系的全谱磁激发进行的测量, 为理解这些体系中磁激发的轨道选择性提供了新的实验证据. 本文将聚焦 BaFe_2As_2 、 NaFeAs 、 FeSe 三个典型体系, 从多带洪特金属的轨道选择性角度出发, 归纳并讨论铁基超导体中的向列自旋关联, 以及自旋关联和激发的轨道选择性.

关键词: 自旋激发, 强关联电子, 铁基超导, 电子向列相, 轨道选择性

PACS: 71.27.+a, 74.70.-b, 75.30.Et, 74.25.F-

1 电子向列性和向列自旋关联

在铁基超导的研究中, 探索和理解多种交织序 (Intertwined order) 之间的相互作用, 是理解超导电性起源的基础^[1-3]. 铁基超导体中一个普遍存在的交织序是电子向列相, 其特征是体系的电子态在保持平移对称的同时自发破缺晶格的四重旋转对称性 (C_4)^[1]. 电子向列相存在于铁基超导体的顺磁正交态, 向列相变温度 T_{nem} 和从四方相到正交相的结构相变温度 T_s 相重合. 从 2010 年开始, 单轴压力退孪晶样品的电阻、电子结构等测量揭示了显著的面内电子各向异性, 证明了向列相及其涨落的存在^[4-6]. 随后, 弹电阻 (Elastoresistance) 系数 $-2m_{66}$ 的测量给出了居里-外斯发散的向列极化率 (nematic susceptibility)^[7], 表明

向列相主要由电子自由度驱动. 多种互补的实验手段, 从多个物理量的角度描绘了相图中宽广区域内组分依赖的向列涨落, 以及在最佳超导电性附近的向列相量子临界区域, 表明向列相与超导存在关联^[1]. 然而, 电子向列性的微观起源, 一直是铁基超导研究中存在争论的重要课题^[6,8,9].

在理论层面, 关于向列性起源较为主流的观点是自旋驱动说 (Spin-driven scenario)^[1]. 在该假说中, 向列序被视为源自条纹反铁磁序的“遗迹序” (Vestigial/Ising-like order). 具体而言, 在面内一个铁原子 (1-Fe) 单胞 ($a = b \approx 2.8\text{\AA}$) 对应的布里渊区内, 高对称波矢 $\mathbf{Q}_X = (\pi, 0)$ 与 $\mathbf{Q}_Y = (0, \pi)$ (在 2-Fe 布里渊区内也常记作 $\mathbf{Q}_1 = (1, 0)$ 、 $\mathbf{Q}_2 = (0, 1)$) 相联系的磁有序参量 \mathbf{M}_X 与 \mathbf{M}_Y 彼此竞争, 其复合序参量 $\phi \sim \langle M_X^2 - M_Y^2 \rangle \equiv \langle \mathbf{M}_1 \cdot \mathbf{M}_2 \rangle$

† 通信作者. E-mail: luxy@bnu.edu.cn (通信作者)

第一作者. E-mail: 202211200052@mail.bnu.edu.cn (第一作者)

* 国家重点基础研究发展计划 (批准号: 2021YFA1400401)、国家自然科学基金 (批准号: 12174029, 11922402)、和中央高校基本科研业务费专项资金 (批准号: 2243300003) 资助的课题.

可表征向列序参量, 并与正交畸变 (如 B_{1g}/B_{2g} 不可约表示应变) 线性耦合.

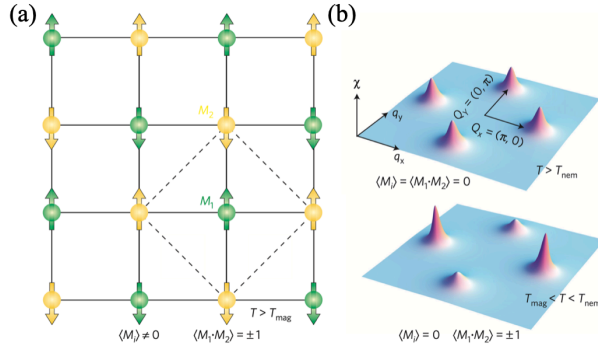


图 1 实空间与动量空间中的向列序. (a) 条纹型反铁磁的实空间构型可等效表示为两种互相嵌套的奈尔 (Néel) 子晶格 (绿色与黄色), 其交错磁矩分别为 \mathbf{M}_1 与 \mathbf{M}_2 . 在动量空间表述下, 由 $\mathbf{Q}_X = (\pi, 0)$ 与 $\mathbf{Q}_Y = (0, \pi)$ 定义的磁序参量分别为 \mathbf{M}_X 与 \mathbf{M}_Y , 满足 $\mathbf{M}_{1,2} = \mathbf{M}_X \pm \mathbf{M}_Y$. (b) 顺磁相中向列有序的出现 ($\langle M_i \rangle = 0$), 及其对倒空间中磁化率分布 $\chi(\mathbf{q})$ 影响的示意图. 当 $T > T_{\text{nem}}$ 时, \mathbf{Q}_X 与 \mathbf{Q}_Y 处的非弹性峰强度相等, 即 $\langle M_X^2 - M_Y^2 \rangle \equiv \langle \mathbf{M}_1 \cdot \mathbf{M}_2 \rangle = 0$; 当 $T_{\text{mag}} < T < T_{\text{nem}}$ 时, 其中一处峰强于另一处, 打破 x 与 y 方向的等价性, 即 $\langle M_X^2 - M_Y^2 \rangle \equiv \langle \mathbf{M}_1 \cdot \mathbf{M}_2 \rangle \neq 0$. 图来自文献 [1].

Fig. 1. Nematic order in real and momentum space. (a) The stripe antiferromagnetic state can be viewed as two interpenetrating Néel sublattices (green and yellow) with staggered moments \mathbf{M}_1 and \mathbf{M}_2 . In the momentum-space basis with magnetic order parameters \mathbf{M}_X and \mathbf{M}_Y at $\mathbf{Q}_X = (\pi, 0)$ and $\mathbf{Q}_Y = (0, \pi)$, one has $\mathbf{M}_{1,2} = \mathbf{M}_X \pm \mathbf{M}_Y$. (b) Onset of nematicity in the paramagnetic phase ($\langle M_i \rangle = 0$), illustrated via the magnetic susceptibility $\chi(\mathbf{q})$ across the first Brillouin zone. For $T > T_{\text{nem}}$, the inelastic peaks at \mathbf{Q}_X and \mathbf{Q}_Y have equal intensity, i.e., $\langle M_X^2 - M_Y^2 \rangle \equiv 0$. For $T_{\text{mag}} < T < T_{\text{nem}}$, one peak exceeds the other, breaking the equivalence of the x and y directions, i.e., $\langle M_X^2 - M_Y^2 \rangle \equiv \langle \mathbf{M}_1 \cdot \mathbf{M}_2 \rangle \neq 0$. Adapted from ref. [1]

在向列相涨落区 ($T > T_s = T_{\text{nem}}$), 体系具有 C_4 对称性, X/Y 等价, \mathbf{M}_X 和 \mathbf{M}_Y 的平均值均为零, 即磁有序未建立; $\phi \sim \langle M_X^2 - M_Y^2 \rangle$ 也为零.

而当体系进入 (顺磁正交的) 向列相时, 虽然 \mathbf{M}_X 和 \mathbf{M}_Y 的平均值仍为零, 可以作为向列序参量的 $\langle M_X^2 - M_Y^2 \rangle$ 并不为零. 该框架对强耦合与巡游两类描述均适用: 向列相可先于静态磁有序出现, 打破 C_4 对称性而不产生净磁矩.

实验上, $\langle M_X^2 - M_Y^2 \rangle$ 对应于在 \mathbf{Q}_X (\mathbf{Q}_1) 与 \mathbf{Q}_Y (\mathbf{Q}_2) 处的自旋涨落谱强度差异 (大小依赖于能量和温度), 其也会影响核磁共振的核自旋弛豫率 $1/T_1T$ 的特征、剪切模量 C_{66} 随向列极化率同步软化/回硬、以及准粒子散射各向异性等. 尤为关键的是, 向列相的自旋驱动说将 $\phi \sim \langle M_X^2 - M_Y^2 \rangle$ ——我们称之为“向列自旋关联” (nematic spin correlations) [10,11]——界定为核心可观测量, 即自旋-自旋关联函数在 \mathbf{Q}_X 与 \mathbf{Q}_Y 处的强度差 $\Delta I(\mathbf{Q}, E) = I(\mathbf{Q}_1, E) - I(\mathbf{Q}_2, E)$, 其不为零时即指向自旋主导的向列相起源. 然而, 由于低能自旋涨落起源于 Γ 点费米面到 $M/X/Y$ 点费米面之间的带间散射, 有的理论假说认为轨道序才是 $\langle M_X^2 - M_Y^2 \rangle \neq 0$ 的根本原因. 在 T_s 以下, 如果进一步降温使体系进入反铁磁条纹序, 反铁磁波矢为 $\mathbf{Q}_X = (1, 0)$, 此时 $\langle M_X \rangle \neq 0$, $\langle M_Y \rangle = 0$, 同时 $\langle M_X^2 - M_Y^2 \rangle \neq 0$, 但此时由于反铁磁序破缺了自旋旋转对称性, $\langle M_X^2 - M_Y^2 \rangle \neq 0$ 既可能来源于自旋波的对称性, 也可能仍然由向列自旋关联所主导.

为深入理解以上问题, 需要采用非弹性中子散射 (Inelastic neutron scattering, INS) 研究向列自旋关联和本征自旋激发谱. 这首先需要通过单轴应变消除晶体的孪晶 (退孪晶, Detwinning), 形成单一方向晶畴占主导的正交相样品, 从而能够直接比较 \mathbf{Q}_1 与 \mathbf{Q}_2 处的谱权重. 在此前的综述论文中, 我们已经详细介绍了单轴压力退孪晶技术在铁基超导研究中的应用 [12]. 结合这些技术, 近年来的非弹性中子散射研究已经在向列自旋关联和本征磁激发谱方面取得了一系列进展. 2014 年, 在对单轴压强退孪晶 $\text{BaFe}_{2-x}\text{Ni}_x\text{As}_2$ 的非弹性中子散射研究中, 我们首先在顺磁四方相内即观测到了两重对称的低能自旋激发——即 $I(\mathbf{Q}_1) \neq I(\mathbf{Q}_2)$ ——其出现温标与电子各向异性 (如电阻) 相呼应 [10]. 这使得向列自旋关联成为研究电子向列性及其涨落的重要手段. 在本文中, 我们将讨论如何从铁基超导材料的多带洪特金属本质出发, 探讨在轨道选择的统一框架下理解向列自旋关联及后面即将介绍的轨道依赖的磁关联和磁激发.

2 洪特金属与轨道选择性

在铁基超导体中, FeX_4 ($X = \text{As}, \text{P}, \text{Se}$ 等) 四面体的晶体场将 Fe 的 $3d$ 轨道劈裂为能量较高的 t_{2g} 轨道 (d_{xz} 、 d_{yz} 、 d_{xy}) 与能量较低的 e_g 轨道 (d_{z^2} 、 $d_{x^2-y^2}$)。其中 t_{2g} 轨道更接近费米能级, 构成了费米面及其附近的能带结构, 在布里渊区中心 (Γ 点) 形成空穴口袋, 在布里渊区边界 (M 或 X/Y 点) 形成电子口袋 [13-15]。需要强调的是, 结构参量——尤其是 Fe 面到阴离子层的垂直距离 (即“阴离子高度”, h_{FeX})——对材料中的电子关联与自旋动力学具有关键调控作用 [16,17]。

目前的普遍认识是, 铁砷化物与铁硫 (硒/碲) 化物作为多轨道体系, 均属于洪特金属: 中等强度的在位库仑排斥 U 与显著的原子内洪特耦合 J_{H} 共同决定了其电子性质 [16,18]。在这类体系中, U (典型量级 $\sim 3-5$ eV) 抑制同一轨道上的双占据, 而 J_{H} (约 $0.5-1$ eV) 则通过在同一 Fe 位上使不同轨道的自旋平行排列而倾向于高自旋构型, 从而在不 (完全) 进入莫特绝缘态的情况下有效稳定局域磁矩 [19]。

洪特耦合使得轨道间 (Inter-orbital) 跃迁呈现显著的“非相干”特征 [16]。电子在不同轨道间跃迁的能量代价依赖于具体的自旋排布与轨道占据, 从而在跃迁矩阵元中引入了多种构型依赖的跃迁过程; 这些跃迁能量各不相同的过程产生的不均一性破坏了跨轨道跃迁的相位相干性。相较之下, 向同一轨道内 (Intra-orbital) 空态的跃迁仅面对相对均一的动能势垒, 因而能在各自的轨道子带内保持较好的准粒子相干性。上述轨道内和轨道间跃迁的二分化导致了“轨道—电子结构”的深度解耦: 宏观电子性质 (电输运、费米面拓扑、准粒子相干性等) 呈现出强烈的“轨道选择性”。

受抑制的轨道间杂化阻碍了高度混合轨道能带的形成, 结果是更为清晰的、按轨道分辨的电子态, 表现为显著的“轨道依赖的关联强度”与“轨道依赖的相干性” [16]。例如, 对一系列体系电子有效质量的测量发现, 在铁硒化物中 d_{xy} 轨道的重整化远强于 d_{xz}/d_{yz} [14,16]; 扫描隧道显微谱学 (STM/STS) 的研究也发现, 在 FeSe 中 d_{xy} 轨道的相干性显著低于 d_{xz}/d_{yz} [20]。

这种轨道选择性对磁激发也有着重要影响 [21-24]。在洪特耦合主导的多轨道体系中, 轨道间

自旋涨落 (即涉及两个不同轨道的协同自旋翻转) 通常伴随着原子内总自旋 S_{total} 的降低 (在局域尺度上破坏高自旋构型), 因而需要克服能量代价 $\sim J_{\text{H}}$ 。因此, 轨道间自旋涨落受到 J_{H} 的抑制, 而轨道内自旋涨落成为了低能磁激发的主导机制。尽管自旋翻转仍需克服洪特耦合能 J_{H} , 但该过程可通过超交换机制 ($J_{\text{AF}} \sim t^2/U \ll J_{\text{H}}$) 在特定轨道通道内实现相干传播, 形成自旋波等集体激发。

从弱耦合角度来看, 轨道间跃迁的相干性减弱会抑制由费米面嵌套驱动的轨道间粒子-空穴激发过程。因此, 轨道间自旋涨落的强度大幅衰减。相比之下, 轨道内传播路径的相干性得以保留, 使得同一轨道能带内的费米面嵌套效应更为显著, 进而在磁激发中表现为强烈的轨道内响应。这种对轨道内过程的偏好机制是轨道选择性或轨道依赖行为的重要物理根源。结合具体跃迁过程对结构参量的敏感性, 可进一步理解不同轨道中准粒子质量增强与电子关联强度的差异 [16]。更具体地, 轨道间跃迁强度的大小受制于结构参量 (如阴离子高度) 及轨道构型的对称性。就最近邻 Fe-Fe 跃迁而言, 轨道内跃迁积分 $t_{\alpha,\alpha}$ 可拆解为两部分: 一是直接的 Fe-Fe 轨道重叠, 二是经由阴离子 (As、Se、Te 等) 介导的间接跃迁, 二者符号相反, 容易形成“动能阻挫”(Kinetic frustration) [16]。在 d_{xz} 和 d_{yz} 轨道中, 间接通道占主导; 而在 d_{xy} 轨道中, 直接和间接通道的强度相当, 易发生互相抵消。随着阴离子高度的增加 (例如从 LaFeAsO 到 FeTe), 间接跃迁路径被削弱, 从而导致 $t_{xy,xy}$ 显著减小甚至接近零。这种动能阻挫导致 d_{xy} 轨道的准粒子质量增强、相干性减弱, 表现出更强的局域性。

这一趋势可通过不同体系间阴离子高度的变化清晰观察到——从 LaFeAsO、BaFe₂As₂、LiFeAs、NaFeAs、FeSe 到 FeTe, d_{xy} 轨道的跃迁积分逐步降低, 导致电子关联增强 [14,17]。在碱金属插层的 FeSe 体系中 (如 $A_x\text{Fe}_{2-y}\text{Se}_2$, $A = \text{K}, \text{Rb}, \text{Cs}$), 研究表明 d_{xy} 轨道已逼近莫特绝缘极限, 而 d_{xz} 、 d_{yz} 轨道则仍保持金属性, 形成了“轨道选择的莫特绝缘态” [14]。

综上所述, 洪特耦合、轨道选择的电子关联与结构参数之间的紧密耦合, 共同驱动了铁基超导体中普遍存在的具有轨道依赖特征电子与磁关联, 构成了理解其低能物理的核心框架。

3 轨道选择的自旋涨落

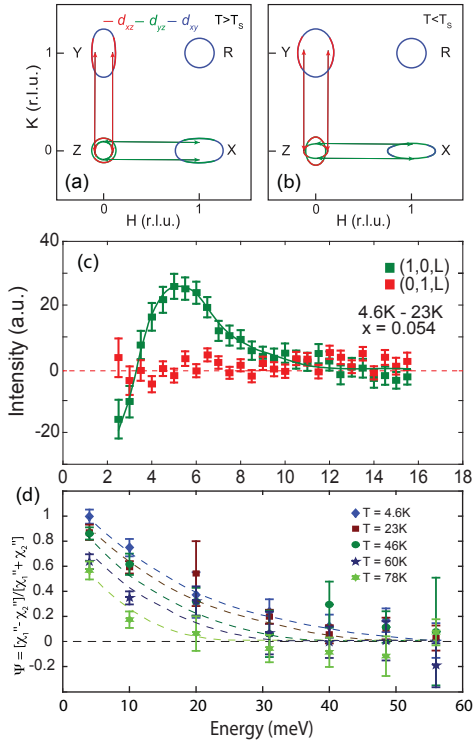


图 2 (a), (b) $\text{Ba}(\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x)_2\text{As}_2$ ($x = 0.054$) 在结构相变温度上下的费米面示意图, 绿色和红色箭头表示 $\mathbf{Q}_1 = (1,0)$ 和 $\mathbf{Q}_2 = (0,1)$ 的费米面嵌套 (带间散射). (c) $(1,0)$ 和 $(0,1)$ 处的自旋共振峰测量. 可以看到自旋共振峰只出现在 $(1,0)$. (d) 向列自旋关联的温度和能量依赖. 图来自文献 [24]

Fig. 2. (a), (b) Schematic Fermi surfaces of $\text{Ba}(\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x)_2\text{As}_2$ ($x = 0.054$) at temperatures above and below the structural transition. Green and red arrows denote Fermi-surface nesting (interband scattering) at $\mathbf{Q}_1 = (1,0)$ and $\mathbf{Q}_2 = (0,1)$. (c) Spin resonance peaks at $(1,0)$ and $(0,1)$, showing that the resonance appears only at $(1,0)$. (d) Temperature and energy dependence of the nematic spin correlations. Adapted from ref. [24]

由于体系中存在显著的轨道选择性, 超导配对本身亦可能呈现出强烈的轨道依赖性 [25]. 在这一图景下, 库珀对更倾向由具有特定轨道性质的电子组成, 从而使超导能隙主要分布于与该轨道关联更紧密的费米面区域, 呈现出显著的各向异性.

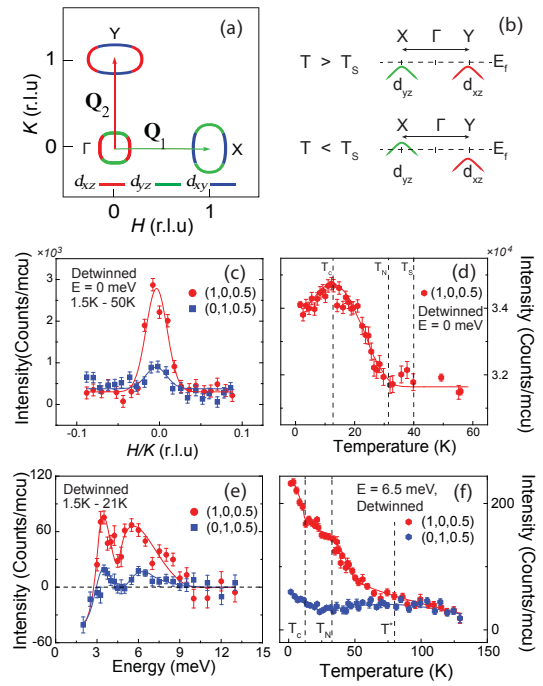


图 3 (a) $\text{NaFe}_{0.985}\text{Co}_{0.015}\text{As}$ 在顺磁四方相的费米面示意图. 箭头表示费米面嵌套矢量 $\mathbf{Q}_1 = (1,0)$ 与 $\mathbf{Q}_2 = (0,1)$. (b) ARPES 测量给出的在 T_s 以上与以下的 d_{yz} 与 d_{xz} 能带示意图. (c) 约 10 MPa 单轴压力下, 在 $(1,0,0.5)$ 与 $(0,1,0.5)$ 的磁布拉格峰比较. (d) $\mathbf{Q}_1 = (1,0,0.5)$ 处反铁磁峰强度随温度的变化. (e) 部分退孪晶样品在 \mathbf{Q}_1 与 \mathbf{Q}_2 处的中子自旋共振峰. (f) 在 \mathbf{Q}_1 与 \mathbf{Q}_2 处, 能量 $E_{r2} = 6.5$ meV 的自旋激发强度随温度的变化. 图来自 [21]

Fig. 3. (a) Schematic Fermi surfaces of $\text{NaFe}_{0.985}\text{Co}_{0.015}\text{As}$ in the paramagnetic tetragonal phase. Arrows mark nesting vectors $\mathbf{Q}_1 = (1,0)$ and $\mathbf{Q}_2 = (0,1)$. (b) Schematic d_{yz} and d_{xz} bands above and below T_s from ARPES. (c) Temperature differences of transverse scans at $(1,0,0.5)$ and $(0,1,0.5)$ under ~ 10 MPa uniaxial pressure. (d) AF peak intensity vs temperature at $\mathbf{Q}_1 = (1,0,0.5)$. (e) Neutron spin resonance at \mathbf{Q}_1 and \mathbf{Q}_2 in a partially detwinned sample. (f) Temperature dependence of background-subtracted spin excitations at $E_{r2} = 6.5$ meV at \mathbf{Q}_1 and \mathbf{Q}_2 . Adapted from ref. [21].

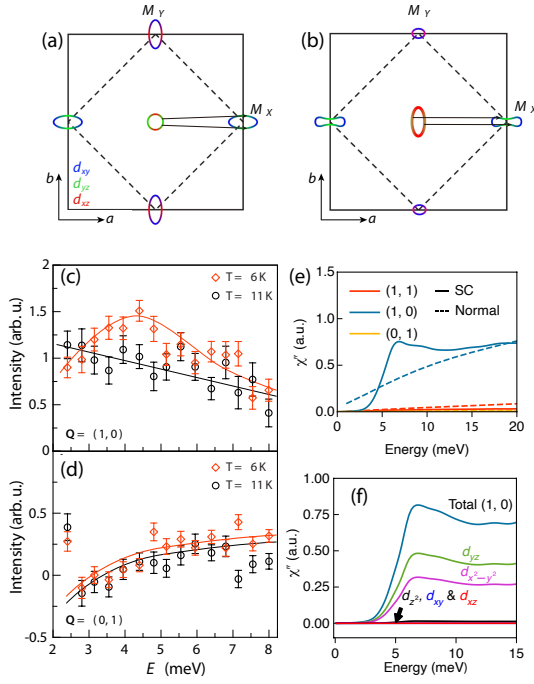


图 4 (a), (b) FeSe 在四方相 ($T > T_s$) 与正交相 ($T < T_s$) 下的 1-Fe 布里渊区中的简化费米面结构图. (c), (d) 在 $\mathbf{Q}_1 = (1, 0)$ 和 $\mathbf{Q}_2 = (0, 1)$ 处测得的低能自旋激发在超导态以下表现出明显各向异性. (e) 轨道选择性模型预测, 在低能区, 自旋涨落主要集中于 $(\pm 1, 0)$ 波矢附近, 并在进入超导态后显著增强. 图中, SC 和 Normal 分别表示超导态和正常态. (g) 此类自旋涨落主要来源于 d_{yz} 轨道的本征态内激发, 反映了轨道选择的自旋关联的主导特征. 图来自于文献 [23,31]

Fig. 4. (a), (b) Schematic Fermi surfaces of FeSe in the unfolded 1-Fe Brillouin zone are shown for the tetragonal ($T > T_s$) and orthorhombic ($T < T_s$) phases. (c), (d) Low-energy spin excitations measured at $\mathbf{Q}_1 = (1, 0)$ and $\mathbf{Q}_2 = (0, 1)$ reveal significant anisotropy below T_c . (e) The orbital-selective model predicts dominant low-energy spin fluctuations at $(\pm 1, 0)$, which are further enhanced below T_c . SC and Normal represent superconducting and normal states, respectively. (g) These spin fluctuations at $(1, 0)$ are primarily governed by intra-orbital contributions from the d_{yz} orbital. Adapted from refs. [23,31].

研究人员首先在体相 FeSe 中观测到了“轨道选择性库珀配对”(Orbital-selective Cooper pairing) 的实验证据 [20,26]. Sprau 等人在亚开尔

文温度下通过 Bogoliubov 准粒子干涉 (Bogoliubov quasiparticle interference, BQPI) 成像, 以约 $75 \mu\text{eV}$ 的能量分辨率首次精确描绘了 FeSe 的超导能隙结构. 值得注意的是, 空穴与电子口袋上的能隙最大值在动量空间中呈正交分布 (即两者的能隙波节方向相差 90°), 这一现象表明两类费米面上的超导能隙可能相位相反. 更为关键的是, 通过将实验测得的 BQPI 数据与无规相近似 (Random Phase Approximation, RPA) 理论计算对比分析 [27], 发现 FeSe 中的配对主要由具有 Fe $3d_{yz}$ 轨道性质的电子主导, 从而为“轨道选择性配对”的物理图像提供了有力的实验证据.

研究发现, 上述轨道选择性配对的微观机制, 与“轨道选择的自旋涨落” (Orbital-Selective Spin Fluctuations, OSSF) 密切相关 [18,27,28]. 在 FeSe 中, 晶体于 $T_s \approx 90 \text{ K}$ 发生向列相变, 四重旋转对称性被打破, 导致 d_{xz} 和 d_{yz} 轨道能级发生明显分裂. 这一能级分裂不仅重塑了费米面结构, 而且显著改变各轨道的准粒子相干性和谱权重 [29,30]. 由此可见, 向列相增强了轨道间性质差异, 进一步强化了正常态中的电子关联效应和轨道选择性. 考虑向列相对轨道选择性的影响, 进一步的理论工作将向列性与 OSSF 明确关联起来 [28]. 结合了电子向列相和 OSSF 的理论模型定量解释了 FeSe 中观测到的超导能隙各向异性, 表明其超导电性不仅具有显著的轨道选择性, 而且在根本上由轨道选择的自旋涨落所驱动.

由于自旋涨落本身具有显著的轨道选择性, 只有在退孪晶样品上开展测量, 才能避免孪晶双畴的平均效应掩盖材料本征的各向异性 [4,5,10,30]. 受 FeSe 中“轨道选择性库珀配对”发现的启发, 研究人员随后在施加单轴压力/应变以实现退孪晶的多个铁基超导体中开展了系统的非弹性中子散射实验, 包括 $\text{NaFe}_{1-x}\text{Co}_x\text{As}$ [21]、FeSe [23] 和 $\text{Ba}(\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x)_2\text{As}_2$ [24] 等典型材料. 如图 2 所示, 在单轴压力退孪晶的欠掺杂 $\text{Ba}(\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x)_2\text{As}_2$ ($x = 0.054$, $T_c \approx 21 \text{ K}$, $T_N \approx 38 \text{ K}$, $T_s \approx 45 \text{ K}$) 中, 自旋共振峰只出现在 $\mathbf{Q}_1 = (1, 0)$ 处 (即沿 d_{yz} 轨道占优方向), 而在 $\mathbf{Q}_2 = (0, 1)$ 处不存在共振峰. 这一结果和理论预言的 d_{yz} 轨道选择的自旋涨落的波矢一致. 此外, 低能自旋激发谱呈现出明显的 C_2 对称性. 低温下, 这种各向异性在能量上可以持续到约 50 meV . 低能磁激发的各向异性在温度上则可以持续到高于 T_s 的 80 K . 在欠掺杂的

NaFe_{0.985}Co_{0.015}As 中,如图 3 所示,单轴压力下的非弹性中子散射实验揭示了和 Ba(Fe_{1-x}Co_x)₂As₂ 相似的结果:自旋共振峰只出现在 $\mathbf{Q}_1 = (1, 0)$, 并且低能自旋激发各向异性可以持续到远高于结构相变的温度. 通过和能带结构进行比较,发现 $\mathbf{Q}_1 = (1, 0)$ 处的磁激发来源于 Γ 点的空穴带与 X 点电子带之间的带间散射,这一散射主要涉及电子费米面中的 d_{yz} 轨道成分.

由于轨道选择的超导配对最早在 FeSe 中获得实验证实,如下将介绍 FeSe 中测得各向异性自旋涨落特征,并据此讨论其“轨道选择性”的识别依据 [23]. 对于 FeSe,我们采用不同的退孪策略:将多片 FeSe 单晶粘附在 BaFe₂As₂ 单晶上,对 BaFe₂As₂ 施加单轴压力. 冷却至 BaFe₂As₂ 的结构相变温度 $T_s \approx 137$ K 时, BaFe₂As₂ 发生退孪晶并产生正交畸变,从而带动其上的 FeSe 晶体一同退孪晶. 如图 4(a), (b) 所示,退孪晶 FeSe 的费米面呈现显著的轨道分化,进入向列相后, d_{xz} 和 d_{yz} 产生能量劈裂,使得 d_{yz} 轨道成分的带间散射沿反铁磁波矢 $\mathbf{Q}_{AF} = (1, 0)$ 显著增强. 与此相对应,图 4(c), (d) 显示的退孪晶 FeSe 的非弹性中子散射结果表明:低能自旋共振峰仅在 (1, 0) 处被观测到,在 (0, 1) 处并未检测到共振峰. 这种动量空间中的各向异性涨落模式紧密对应于费米面轨道构型,构成 FeSe 中“轨道选择的自旋涨落”的关键实验证据 [23].

上述实验结果与引入“轨道依赖准粒子相干性”(即在 RPA 计算中人为考虑了 d_{xy} 轨道相干性的显著降低)的理论模型完全相符. 特别是,在 RPA 框架下引入 d_{xy} 轨道相干性受抑制的设定后,能够成功再现实验中观测到的各向异性自旋共振峰特征 [图 4(e)]. 进一步对磁激发作轨道通道分解后发现,计算得到的动力学磁化率 χ'' 主要由 d_{yz} 轨道贡献主导 [图 4(f)]. 这些结果共同表明:FeSe 中的超导配对机制与向列相下增强的、表现出轨道选择性的各向异性自旋涨落密切相关 [23,28].

综上,通过对退孪晶 FeSe 的非弹性中子散射测量及相关理论分析,建立起向列电子关联、轨道选择的自旋激发和超导电子配对之间的直接联系,从而对最初基于 STM 所提出的“轨道选择性配对”图景 [20,26,27] 提供了实验证实与理论拓展.

最后值得强调的是,来自退孪晶中子散射实验、RPA 理论计算以及多种谱学手段的多方面证

据,均表明上述三个典型体系中,主导配对作用的“胶水”是以 d_{yz} 轨道为主的自旋涨落. 这一发现表明,“轨道选择性”是理解铁基超导体中超导能隙各向异性和配对机制的重要基本原则.

4 轨道依赖的自旋关联

如前所述,由于超交换作用与自旋波的相干传播本质上具有轨道依赖性,高能自旋波(即高能磁激发)也可能是由多个轨道内自旋激发构成的. 早期的巡游多轨道理论计算表明,铁基超导体中的自旋激发可分解为若干轨道内激发,且这些通道之间相互作用较弱 [32]. 据此预期,延伸至能带顶端的高能磁激发应呈现出明确的轨道选择性特征 [22].

厘清上述问题的关键,在于在高质量退孪晶样品上获得体系本征的自旋激发谱. 图 5 总结了退孪晶 BaFe₂As₂ 的全谱自旋波色散的非弹性中子散射实验结果. 图 5(a)-(c) 显示:沿 $[1, K]$ 方向观测到清晰且陡峭的自旋波色散,而在与其垂直的 $[H, 1]$ 方向上激发明显更弱. 从巡游模型出发,这种各向异性表明低能自旋激发主要来自 d_{yz} 轨道通道,而 d_{xz} 轨道在该能区贡献甚微. 从局域磁矩模型出发,自旋波应该只出现在反铁磁波矢 $\mathbf{Q}_{AF} = (1, 0)$ 附近.

值得强调的是,在更高能量区 ($E \gtrsim 100$ meV) [图 5(d)], 在 $(0, \pm 1)$ 波矢附近又出现了明显增强的自旋激发. 这种现象在巡游模型中对应于 d_{xz} 轨道通道贡献的逐步显现;而局域模型难以解释. 上述结果表明, $(1, 0)$ 和 $(0, 1)$ 附近的磁激发分别来自于 d_{yz} 和 d_{xz} 轨道,呈现出不同的强度和能量依赖关系,即自旋波/磁激发具有轨道选择性.

上述本征自旋波色散可由中等电子关联强度的巡游多轨道模型较好刻画,其相互作用参数为 $U \approx 1.46$ eV、洪特耦合 $J_H \approx 0.36$ eV [见图 5(e)]. 该模型不仅能够重现自旋波的色散特征,还准确捕捉了实验观察到的高能自旋激发未在 $(\pm 1, \pm 1)$ 处汇聚的现象 [11]. 一般而言, $(\pm 1, \pm 1)$ 处的强自旋激发需依赖 d_{xy} 轨道的显著贡献;该特征在 NaFeAs 与 FeSe 等电子关联更强的体系中已有明确报道 [22,33], 而在 BaFe₂As₂ 中则表现不明显.

尽管 RPA 理论只能再现实验谱函数 $\chi''(E)$ 总强度的大约三分之一,但其成功描述了局域动态磁化率在不同方向上的各向异性,特别是磁布里渊区两个特征波矢 $\mathbf{Q}_1 = (\pm 1, 0)$ 与 $\mathbf{Q}_2 = (0, \pm 1)$

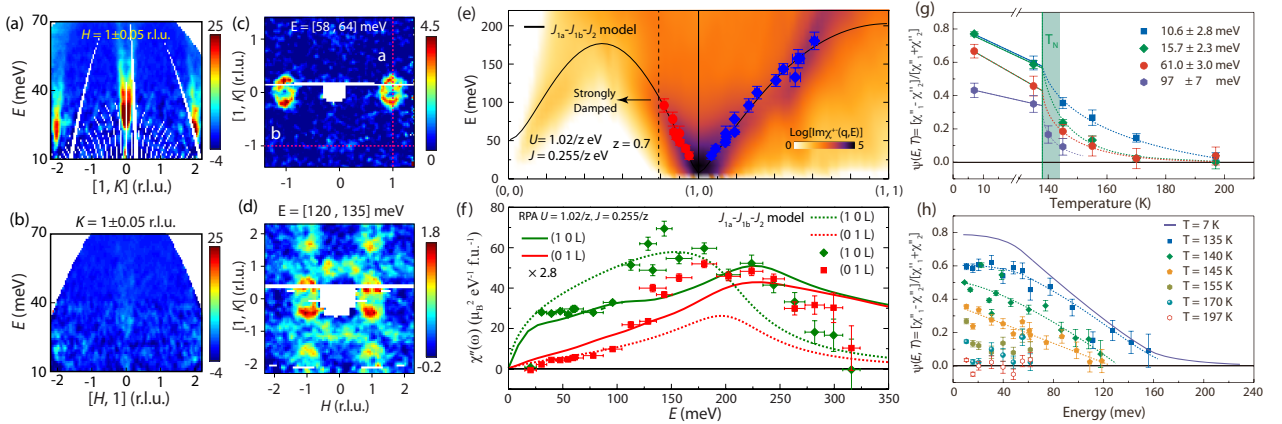


图 5 (a), (b) 沿 $[1, K]$ 和 $[H, 1]$ 方向的磁激发色散，动量方向在 (c) 图中用红色虚线标出. (c), (d) 磁激发在 $[H, K]$ 平面内的等能量切片图. (e) 退孪晶 BaFe_2As_2 在 $T = 7$ K 时的自旋波色散. 黑色曲线为基于孪晶样品拟合的 $J_{1a}-J_{1b}-J_2$ 各向异性海森堡模型的结果. 背景强度则显示了 RPA 计算的谱重（重整化因子为 $z = 0.7$ ），采用的相互作用参数为 $U = 1.02/z$ eV 和 $J = U/4$. (f) $(1, 0)$ 和 $(0, 1)$ 反铁磁布里渊区的局域动态磁化率 $\chi''(E)$ 的能量依赖性. 绿色和红色虚线为孪晶样品的海森堡哈密顿量拟合结果，实线为平均场 (MF) 结合 RPA 理论计算的结果，并为便于比较整体乘以 2.8. (g) 不同能量自旋激发的各向异性 ψ 随温度的变化情况. (h) 不同温度 (7 K 至 197 K) 下 ψ 随能量转移的演化. 图来自文献 [11]

Fig. 5. (a)-(d) Magnetic scattering intensity projected onto energy-momentum planes. (a), (b) Magnon dispersions along the $[1, K]$ and $[H, 1]$ directions, respectively, corresponding to the red dashed lines in (c). (c), (d) Constant-energy slices in the $[H, K]$ plane. (e) Extracted spin-wave dispersion of detwinned BaFe_2As_2 at $T = 7$ K, obtained from a series of constant-energy cuts. The black curves represent fits based on a $J_{1a}-J_{1b}-J_2$ anisotropic Heisenberg model applied to twinned samples. The background intensity reflects RPA calculations (with renormalization factor $z = 0.7$), using interaction parameters $U = 1.02/z$ eV and $J = U/4$. (f) Energy dependence of the local dynamic susceptibility $\chi''(E)$ at the antiferromagnetic zone centers $(1, 0)$ and $(0, 1)$. Dashed lines denote spin-wave fits using a Heisenberg model from twinned data, while solid lines show MF (Mean Field) + RPA results, scaled by a factor of 2.8 for clarity. (g) The temperature evolution of the spin-excitation anisotropy parameter ψ is shown at various energy transfers. (h) Energy dependence of ψ measured at temperatures ranging from 7 K to 197 K. Adapted from ref. [11]

所对应的谱强度 $\chi''_1(E)/\chi''_2(E)$ 的能量演化关系 [见图 5(f)] . 从向列自旋关联 $\Psi(E, T) = [\chi''_1 - \chi''_2]/[\chi''_1 + \chi''_2]$ 随温度和能量的演化 [见图 5(g), (h)], 发现在单轴压强 ($P \approx 20$ MPa) 下, $\Psi(E, T)$ 可以持续到 160 K 以上. 这表明, 在施加应力的情况下, 即使温度高于反铁磁转变温度 T_N , 参量 $\Psi(E, T)$ 依然保持显著的各向异性 (可持续到 160 K 以上). 这意味着, 即便在 T_N 以下观测到的自旋波各向异性, 也很可能源自电子向列态 (即轨道选择性的自旋波), 而不单单是由局域磁矩反铁磁有序的对称性决定的.

在退孪晶 NaFeAs 中, $(\pm 1, 0)$ 与 $(0, \pm 1)$ 方向上自旋激发的强度差异与 BaFe_2As_2 十分相似. 然而, 已有实验显示, NaFeAs 的 d_{xy} 轨道具有更强

的局域电子关联, 自旋激发带宽 (~ 120 meV) 明显小于 BaFe_2As_2 , 并且沿着 $\mathbf{Q} = [H, 1]$ 扫描方向的高能激发显示出更强的阻尼, 表现出与 FeSe 类似的行为 [17,33].

图 6 展示了对 BaFe_2As_2 与 NaFeAs 体系磁激发进行轨道分解后的 DMFT 理论计算结果 [22], 分别对应 $d_{xz} - d_{xz}$ 、 $d_{yz} - d_{yz}$ 与 $d_{xy} - d_{xy}$ 轨道内通道. 结果表明: 在 BaFe_2As_2 中, 自旋激发在整个能量范围内主要由 d_{yz} 通道主导; 而在 NaFeAs 中, $E < 100$ meV 范围内的激发主要来自 $d_{yz} - d_{yz}$ 轨道内过程, 并因向列相下的 C_2 对称性而被进一步增强; 在更高能区, 磁激发转由 $(\pm 1, \pm 1)$ 附近的 $d_{xy} - d_{xy}$ 通道主导, 显示 C_4 对称性, 且对温度不敏感.

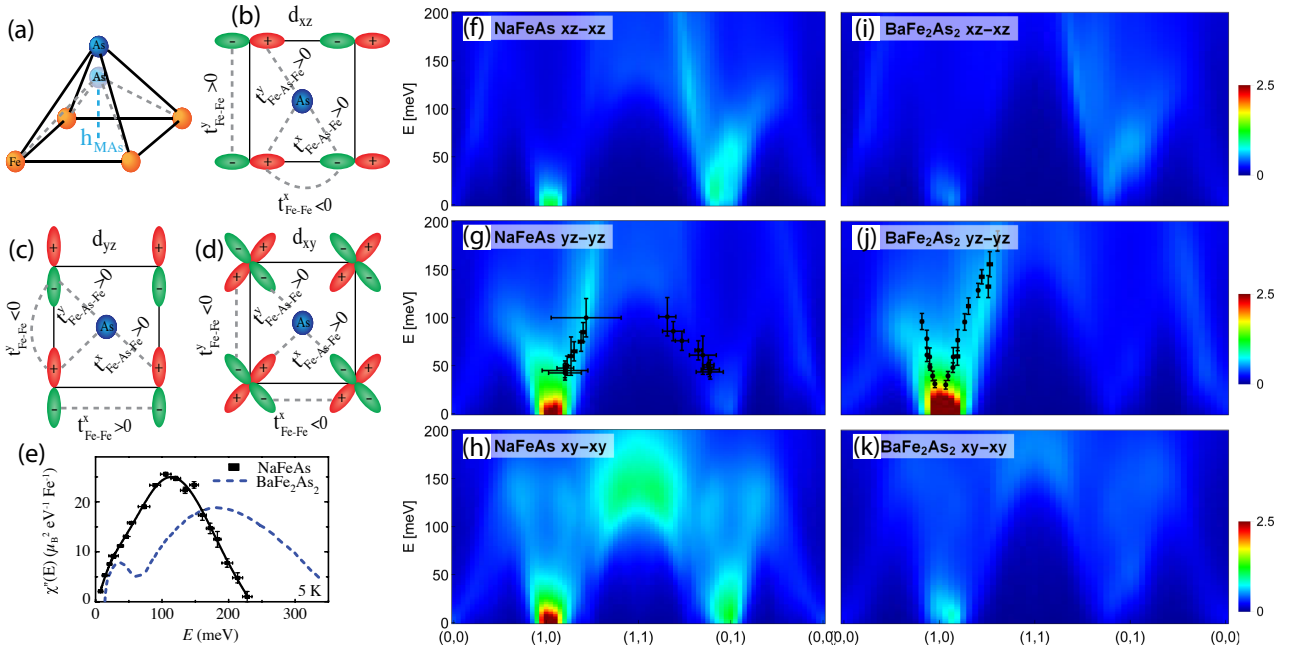


图 6 (a) FeAs 四面体结构示意图, 显示 NaFeAs 相较于 BaFe₂As₂ 的 As 高度 (h_{FeAs}) 约增加 0.058 Å, 同时面内 Fe-Fe 距离由 2.802 Å 缩短至 2.791 Å, 减少约 0.011 Å. (b)-(d) 不同轨道的电子跃迁路径示意图, 分别对应于 (b) d_{xz} 、(c) d_{yz} 和 (d) d_{xy} 轨道. (e) NaFeAs 与 BaFe₂As₂ 的能量依赖局域动态磁化率实验测量结果. (f)-(k) 退孪晶 BaFe₂As₂ 和 NaFeAs 中轨道选择性的自旋激发. 密度泛函理论 (Density Functional Theory, DFT) 结合动力学平均场理论 (Dynamical Mean Field Theory, DMFT) DFT + DMFT 计算在正交晶胞高对称路径上的 $\mathbf{Q}-E$ 截面强度图, 分别对应于 NaFeAs [(f)-(h)] 与 BaFe₂As₂ [(i)-(k)] 中的 (f), (i) $d_{xz}-d_{xz}$, (g), (j) $d_{yz}-d_{yz}$ 和 (h), (k) $d_{xy}-d_{xy}$ 轨道内散射. 中子散射数据的激发峰位置与 NaFeAs (g) 和 BaFe₂As₂ (j) 的 $d_{yz}-d_{yz}$ 轨道内散射所对应的 DFT + DMFT 强度分布高度吻合. 在高于约 110 meV 的能区, 自旋涨落在 (1, 1) 处与 $d_{xy}-d_{xy}$ 带内散射相符. 在 BaFe₂As₂ 中, 该激发能量上移至 $E \approx 150$ meV 以上, 并可延伸至约 300 meV 的带顶, 表明其更大的整体能带宽度主要由 $d_{xy}-d_{xy}$ 自旋涨落主导. 图来自文献 [17,22]

Fig. 6. (a) FeAs tetrahedron diagram showing ~ 0.058 Å higher Fe-As height (h_{FeAs}) in NaFeAs vs. BaFe₂As₂; in-plane Fe-Fe distance shortens by ~ 0.011 Å (from 2.802 Å to 2.791 Å). (b)-(d) Diagrams of electron hopping paths for (b) d_{xz} , (c) d_{yz} , and (d) d_{xy} orbitals. (e) Measured energy-dependent local spin susceptibility for NaFeAs and BaFe₂As₂. (f)-(k) Orbital-selective spin waves in detwinned BaFe₂As₂ and NaFeAs. DFT (Density Functional Theory) + DMFT (Dynamical Mean Field Theory) intensities along $\mathbf{Q}-E$ cuts on high-symmetry paths in the orthorhombic unit cell, for NaFeAs (f)-(h) and BaFe₂As₂ (i)-(k), in $d_{xz}-d_{xz}$ [(f), (i)], $d_{yz}-d_{yz}$ [(g), (j)], and $d_{xy}-d_{xy}$ [(h), (k)] intraorbital channels. Neutron data peak positions match DFT+DMFT intensities in the $d_{yz}-d_{yz}$ channel for both NaFeAs (g) and BaFe₂As₂ (j). Above ~ 110 meV, spin fluctuations at (1, 1) match the $d_{xy}-d_{xy}$ channel. In BaFe₂As₂, these shift above $E \approx 150$ meV and extend to ~ 300 meV band top, showing $d_{xy}-d_{xy}$ fluctuations drive its larger bandwidth. Adapted from refs. [17,22]

需要注意的是, 即使自旋激发的轨道选择特征如此明显, 但更为恰当的仍是将激发谱看作由多个轨道内过程共同构成的集体激发模式——其虽主要由某一轨道通道主导, 但通常携带混合的轨道特征. 例如, 对于 NaFeAs, (1, 0) 附近的低能磁激发主要来源于 d_{yz} 轨道内的自旋涨落; 而在高能区域, 谱权重逐步向 d_{xy} 轨道通道转移, 后者在很大程度上决定了整个自旋激发谱的带宽 [17]. 在这一图景下, (1, 1) 波矢附近的奈尔型激发自然由 d_{xy} 通道贡献; 而沿 $[H, 0]$ 方向显著的方向性阻尼

——在 FeSe 与 NaFeAs 等关联增强体系中尤为显著, 相较于 BaFe₂As₂ 和 CaFe₂As₂ 更为强烈——则可归因于 d_{xy} 轨道准粒子权重 Z_{xy} 下降所导致的相干性削弱与寿命缩短.

轨道选择的自旋激发的图像为多个实验趋势提供了统一解释框架: 包括高能区从 C_2 到 C_4 对称性的恢复、自旋激发带宽的系统性演化、以及体系依赖的各向异性阻尼等等. 该理解与 BaFe₂As₂ 的巡游 RPA 计算结果、以及 NaFeAs 中轨道分解的 DMFT 模拟高度吻合 [11,22,33], 也能够定性解

释最近在退孪晶 FeSe 中观察到的磁激发的特征, 包括 C_2 对称的条纹型自旋激发, C_4 对称的奈尔型自旋激发以及磁激发沿纵向 $[H, 1]$ 和横向 $[1, K]$ 的各向异性阻尼.

需要指出的是, 由于自旋—轨道耦合、轨道混合与非对角超交换等因素的影响, 自旋激发不可能是纯粹的“单轨道”激发; 此外, DMFT 框架中通常采用的局域自能与简化的顶点 (Vertex) 修正, 可能低估了进入 $\mathbf{Q} = (1, 1)$ 处奈尔激发通道的非局域动量依赖的自旋动力学过程. 这或许在一定程度上解释了为何部分 DMFT 计算若未引入额外的巡游 (RPA 类型) 成分, 难以完整再现实验所见的谱权重分布与色散特征. 此外, 目前无论是 RPA 还是 DMFT 计算, 均无法正确描述 $(1, 1)$ 处奈尔自旋激发的色散. 说明铁基超导体中的磁激发的完整理解, 还需要考虑额外的因素.

5 结论

本文围绕 BaFe_2As_2 、 NaFeAs 和 FeSe 三个典型的铁基超导体体系, 总结了铁基超导体中向列自旋关联与轨道选择性自旋激发的研究进展. 从洪特金属的多轨道特性出发, 我们梳理了向列相与轨道依赖磁激发之间的内在联系, 指出轨道选择性不仅决定了自旋激发的空间分布与能量特征, 更深刻影响了超导配对机制的轨道构成. 在低能区, 自旋共振峰与带间散射均表现出显著的 C_2 对称性, 明确指向以 d_{yz} 轨道为主的配对机制; 对于电子关联较强的体系 (如 NaFeAs), 自旋激发在高能区呈现出从 d_{yz} 主导向 d_{xy} 主导的轨道转移趋势, 构成了能量依赖的轨道层级结构. 这一系列现象共同揭示, 铁基体系中的磁激发并非简单的自旋翻转, 而是由多轨道协同贡献的复合激发模式. 同时, 也应该注意, 目前的理论计算和模型仍然无法完全描述 NaFeAs 和 FeSe 中奈尔型激发的色散等. 建立铁基超导体中本征自旋关联及其与超导之间的联系仍然需要更加深入的研究.

参考文献

- [1] Fernandes R M, Chubukov A V, Schmalian J 2014 *Nat. Phys.* **10** 97
- [2] Yu S-L, Li J-X 2013 *Chin. Phys. B* **22** 087411
- [3] Jiang Q, Kang Y-T, Yao D-X 2013 *Chin. Phys. B* **22** 087402
- [4] Chu J-H, Analytis J G, De Greve K, McMahon P L, Islam Z, Yamamoto Y, Fisher I R 2010 *Science* **329** 824
- [5] Yi M, Lu D, Chu J-H, Analytis J G, Sorini A P, Kemper A F, Moritz B, Mo S-K, Moore R G, Hashimoto M, Lee W-S, Hussain Z, Devereaux T P, Fisher I R, Shen Z-X 2011 *Proc. Natl. Acad. Sci.* **108** 6878
- [6] Böhmer A E, Chu J-H, Lederer S, Yi M 2022 *Nat. Phys.* **18** 1412
- [7] Chu J-H, Kuo H-H, Analytis J G, Fisher I R 2012 *Science* **337** 710
- [8] Lu X, Zhang W, Tseng Y, Liu R, Tao Z, Paris E, Liu P, Chen T, Strocov V N, Song Y, Yu R, Si Q, Dai P, Schmitt T 2022 *Nat. Phys.* **18** 806
- [9] Occhialini C A, Sanchez J J, Song Q, Fabbris G, Choi Y, Kim J-W, Ryan P J, Comin R 2023 *Nat. Mater.* **22** 985
- [10] Lu X, Park J T, Zhang R, Luo H, Nevidomskyy A H, Si Q, Dai P 2014 *Science* **345** 657
- [11] Lu X, Scherer D D, Tam D W, Zhang W, Zhang R, Luo H, Harriger L W, Walker H C, Adroja D T, Andersen B M, Dai P 2018 *Phys. Rev. Lett.* **121** 067002
- [12] Li C, Mo Z, Lu X 2024 *Acta Phys. Sin.* **73** 197103 (in Chinese) [李春熠, 莫子夜, 鲁兴业 2024 物理学报 **73** 197103]
- [13] Fernandes R M, Coldea A I, Ding H, Fisher I R, Hirschfeld P J, Kotliar G 2022 *Nature* **601** 35
- [14] Yi M, Zhang Y, Shen Z-X, Lu D 2017 *npj Quantum Mater.* **2** 57
- [15] Sobota J A, He Y, Shen Z-X 2021 *Rev. Mod. Phys.* **93** 025006
- [16] Yin Z P, Haule K, Kotliar G 2011 *Nat. Mater.* **10** 932
- [17] Zhang C, Harriger L W, Yin Z, Lv W, Wang M, Tan G, Song Y, Abernathy D L, Tian W, Egami T, Haule K, Kotliar G, Dai P 2014 *Phys. Rev. Lett.* **112** 217202
- [18] Yu R, Hu H, Nica E M, Zhu J-X, Si Q 2021 *Front. Phys.* **9** 578347
- [19] de' Medici L 2011 *Phys. Rev. B* **83** 205112

- [20] Kostin A, Sprau P O, Kreisel A, Chong Y X, Böhmer A E, Canfield P C, Hirschfeld P J, Andersen B M, Davis J C S 2018 *Nat. Mater.* **17** 869
- [21] Wang W, Park J T, Yu R, Li Y, Song Y, Zhang Z, Ivanov A, Kulda J, Dai P 2017 *Phys. Rev. B* **95** 094519
- [22] Tam D W, Yin Z, Xie Y, Wang W, Stone M B, Adroja D T, Walker H C, Yi M, Dai P 2020 *Phys. Rev. B* **102** 054430
- [23] Chen T, Chen Y, Kreisel A, Lu X, Schneidewind A, Qiu Y, Park J T, Perring T G, Stewart J R, Cao H, Zhang R, Li Y, Rong Y, Wei Y, Andersen B M, Hirschfeld P J, Broholm C, Dai P 2019 *Nat. Mater.* **18** 709
- [24] Tian L, Liu P, Xu Z, Li Y, Lu Z, Walker H C, Stuhr U, Tan G, Lu X, Dai P 2019 *Phys. Rev. B* **100** 134509
- [25] Yu R, Zhu J-X, Si Q 2014 *Phys. Rev. B* **89** 024509
- [26] Sprau P O, Kostin A, Kreisel A, Böhmer A E, Taufour V, Canfield P C, Mukherjee S, Hirschfeld P J, Andersen B M, Davis J C S 2017 *Science* **357** 75
- [27] Kreisel A, Andersen B M, Sprau P O, Kostin A, Davis J C S, Hirschfeld P J 2017 *Phys. Rev. B* **95** 174504
- [28] Benfatto L, Valenzuela B, Fanfarillo L 2018 *npj Quantum Mater.* **3** 56
- [29] Fanfarillo L, Mansart J, Toulemonde P, Cercellier H, Le Fèvre P, Bertran F, Valenzuela B, Benfatto L, Brouet V 2016 *Phys. Rev. B* **94** 155138
- [30] Yi M, Pfau H, Zhang Y, He Y, Wu H, Chen T, Ye Z R, Hashimoto M, Yu R, Si Q, Lee D-H, Dai P, Shen Z-X, Lu D H, Birgeneau R J 2019 *Phys. Rev. X* **9** 031049
- [31] Liu R, Nakamura M, Kamazawa K, Lu X 2024 *Chin. Phys. Lett.* **41** 067401
- [32] Scherer D D, Eremin I, Andersen B M 2016 *Phys. Rev. B* **94** 180405
- [33] Liu R, Stone M B, Gao S, Nakamura M, Kamazawa K, Krajewska A, Walker H C, Cheng P, Yu R, Si Q, Dai P, Lu X 2025 *Nat. Commun.* **16** 5212

录用稿件，非最终出版稿

Nematic spin correlations and orbital-selective spin excitations in iron-based superconductors*

GUO Ting¹⁾ LU Xingye^{1)†}

1) (*Center for Advanced Quantum Studies, School of Physics and Astronomy, Beijing Normal University, Beijing 100875, China*)

Abstract

In the study of iron-based superconductors, the intrinsic spin excitation spectrum serves as a crucial experimental foundation for understanding the interplay among magnetic correlations, electronic nematicity, and the microscopic mechanism of superconductivity. As multi-orbital Hund's metals, these systems exhibit pronounced orbital-selective electronic correlations driven by the interplay of Hund's coupling and kinetic frustration. In recent years, inelastic neutron scattering (INS) experiments on uniaxially detwinned single crystals have successfully disentangled the intrinsic anisotropic spin dynamics from twinning effects, yielding significant progress. This review focuses on three representative systems: BaFe₂As₂, NaFeAs, and FeSe. At low energies, experiments reveal that spin fluctuations and the spin resonance peak originating from interband scattering exhibit a robust twofold (C_2) rotational symmetry, appearing exclusively at $Q_1 = (1, 0)$ and remaining absent at $Q_2 = (0, 1)$. This C_2 symmetry provides direct experimental evidence that superconducting pairing is intimately tied to d_{yz} orbital-selective spin fluctuations. Furthermore, these nematic spin correlations are shown to persist to temperatures well above the structural and magnetic transitions. At high energies, measurements of the full magnetic excitation spectra uncover an energy-dependent orbital hierarchical structure. While low-energy excitations are dominated by the d_{yz} intra-orbital channel, higher-energy spin waves progressively acquire d_{xy} orbital character. This transition manifests as Néel-type excitations near $(\pm 1, \pm 1)$ with C_4 symmetry and distinct, anisotropic damping behaviors. Supported by RPA and DFT+DMFT theoretical frameworks, these findings demonstrate that magnetic excitations in iron-based superconductors are not simple spin flips, but rather composite, multi-orbital cooperative modes. We conclude by discussing the ongoing challenges in theoretically capturing the full dispersion of Néel-type excitations, highlighting the need for further research to fully establish the universal link between intrinsic spin correlations and superconductivity.

Keywords: Spin excitations, Strongly correlated electron, Iron-based superconductors, Electronic nematicity, Orbital selectivity

* Project supported by the Fundamental Research Funds for the Central Universities (Grant No. 2243300003), National Key Projects for Research and Development of China with Grant No. 2021YFA1400400, and the National Natural Science Foundation of China (Grants No. 12174029).

† Corresponding author. E-mail: luxy@bnu.edu.cn

The First Author. E-mail: 202211200052@mail.bnu.edu.cn