

铁基超导体的量子临界行为

李政 周睿 郑国庆

Quantum criticalities in carrier-doped iron-based superconductors

Li Zheng Zhou Rui Zheng Guo-Qing

引用信息 Citation: [Acta Physica Sinica](#), 64, 217404 (2015) DOI: 10.7498/aps.64.217404

在线阅读 View online: <http://dx.doi.org/10.7498/aps.64.217404>

当期内容 View table of contents: <http://wulixb.iphy.ac.cn/CN/Y2015/V64/I21>

---

## 您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

铁基超导体  $\text{FeSe}_{0.5}\text{Te}_{0.5}$  表面隧道谱的研究

Investigation of scanning tunneling spectra on iron-based superconductor  $\text{FeSe}_{0.5}\text{Te}_{0.5}$

物理学报.2015, 64(9): 097401 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.64.097401>

量子线/铁基超导隧道结中隧道谱的研究

Tunneling spectra for quantum wire/iron-based superconductor junction

物理学报.2015, 64(5): 057401 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.64.057401>

典型荷载条件下淤泥孔径分布特征核磁共振试验研究

Nuclear magnetic resonance experimental study on the characteristics of pore-size distribution in muck under several typical loading cases

物理学报.2014, 63(5): 057401 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.63.057401>

$\text{K}_{0.8}\text{Fe}_2\text{Se}_2$  晶体 c 轴向载流子输运特性的研究

Investigation of carrier transport properties along the c-axis in  $\text{K}_{0.8}\text{Fe}_2\text{Se}_2$  superconducting crystals

物理学报.2014, 63(3): 037401 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.63.037401>

## 专题: 超导和关联体系研究进展

铁基超导体的量子临界行为<sup>\*</sup>李政 周睿 郑国庆<sup>†</sup>

(中国科学院物理研究所, 北京凝聚态物理国家实验室, 北京 100190)

(2015年9月6日收到; 2015年10月14日收到修改稿)

铁基超导体呈现丰富的电子相图, 各种有序态相互交叠。本文主要介绍利用核磁共振手段在空穴型和电子型掺杂的  $\text{BaFe}_2\text{As}_2$  以及  $\text{LaFeAsO}_{1-x}\text{F}_x$  这三种具有代表性的铁基超导体中探测到的反铁磁序与超导序的微观共存、量子临界点和量子临界行为。实验发现, 无论在空穴型还是电子型掺杂的铁基超导体中, 反铁磁相变温度都随着掺杂被抑制, 并最终在某个掺杂量降到零温而形成量子临界点。在反铁磁转变温度之上存在结构相变, 其转变温度也随着掺杂而降低。核磁共振谱证实结构相变也形成一个量子临界点。本文介绍核磁共振及输运测量揭示的这两种量子临界点附近存在的量子临界行为, 共存态下奇异的超导性质等。

**关键词:** 核磁共振, 铁基超导体, 自旋涨落, 量子临界性

**PACS:** 74.25.nj, 74.70.Xa, 74.40.Kb, 74.25.Op

**DOI:** 10.7498/aps.64.217404

## 1 引言

量子临界点是相图中某个序参量被完全压制的点。它发生在零温, 但却影响着有限温度范围的物理性质, 在量子临界点附近通常会出现新的物态。在铜氧化物<sup>[1]</sup>和重费米子<sup>[2]</sup>超导体中, 正常态的行为不遵从朗道费米液体理论, 这种反常行为经常被归因于量子临界涨落<sup>[3,4]</sup>。量子临界涨落和超导电性的关系是凝聚态物理中的一个中心问题<sup>[5]</sup>。在近年发现的铁基超导体中<sup>[6,7]</sup>, 反铁磁转变温度  $T_N$  随着掺杂逐渐降低。因此, 这类新物质中可能出现的量子临界性成为一个重要的研究课题。

特别是, 在铁基超导体中反铁磁有序和超导态相互交叠, 因此反铁磁的量子临界点与超导电性的关系备受关注。而要在超导态形成一个量子临界点的前提是两种有序态能够微观共存。此外通过共存问题的研究还可以为超导能隙对称性的研究提供线索, 因为理论研究认为传统的  $s^{++}$  超导态无法与反铁磁态共存, 而  $s^{+-}$  态可以<sup>[8]</sup>。

序参量的量子临界涨落不仅发生在空间域, 而且还会发生在时域<sup>[9,10]</sup>, 相关时间  $\tau_0$  和相关长度  $\xi$  可以通过动态指数  $z$  相联系,  $\tau_0 = \xi^z$ 。很多物理量会受相关时间或相关长度的调制, 例如电阻率和自旋晶格弛豫率 ( $1/T_1$ ), 它们可以用来探测量子临界行为。电阻率可标度为  $\rho \propto T^n$ 。在二维反铁磁自旋密度波 (spin density wave, SDW) 量子临界点, 指数  $n = 1$ ; 而对于  $q = (0, 0)$  的二维有序系统的量子临界点,  $n = 4/3$ <sup>[11,12]</sup>。在量子临界点附近,  $1/T_1$  同样也呈现出温度的标度行为<sup>[11]</sup>。

本文介绍利用核磁共振 (nuclear magnetic resonance, NMR) 以及电阻率测量对空穴型和电子型掺杂的  $\text{BaFe}_2\text{As}_2$  以及  $\text{LaFeAsO}_{1-x}\text{F}_x$  这三种最具代表性的材料的研究结果。着重讨论反铁磁与超导的共存、量子临界点以及相伴随的量子临界行为等问题。铁基超导体已经形成了庞大的体系, 各种研究的成果已经有了很多的积累。对其他体系感兴趣的读者, 建议参考最新的综述文章及其所引用的参考文献<sup>[13]</sup>。

\* 中科院先导B项目(批准号: XDB07020200)、国家重点基础研究发展计划(批准号: 2012CB821402, 2015CB921304)和国家自然科学基金(批准号: 11104336)资助的课题。

† 通信作者。E-mail: gqzheng@iphy.ac.cn

## 2 磁性量子临界点与量子临界性

研究反铁磁量子临界点与超导的关系时,首先要解决的问题是两种有序态是否微观共存。此外,在超导与反铁磁共存的情况下,超导电子配对对称性会受到限制。所以,共存态的研究可以为判断超导的对称性提供帮助。

$\text{BaFe}_2\text{As}_2$  体系(简称 122)是最被广泛研究

的物质,因为它既可以进行空穴型掺杂,如  $\text{Ba}_{1-x}\text{K}_x\text{Fe}_2\text{As}_2$  [14],又可以进行电子型掺杂,如  $\text{BaFe}_{2-x}\text{Ni}_x\text{As}_2$  [15]。我们得到的电子相图如图 1 所示。从图 1 可见,空穴型和电子型  $\text{BaFe}_2\text{As}_2$  中都存在反铁磁与超导交叠的区域。122 体系有较高的超导温度,最高  $T_c$  达 38.5 K,仅次于  $R\text{FeAsO}_{1-x}\text{F}_x$  ( $R$  为稀土元素) 体系。而且 122 体系则能够生长出高质量的单晶,可以进行更为精细的研究。

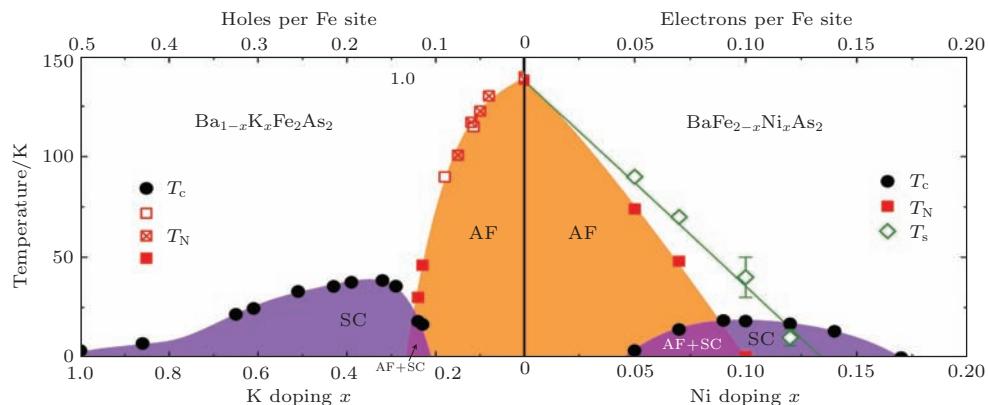


图 1 空穴型和电子型掺杂  $\text{BaFe}_2\text{As}_2$  相图, AF 和 SC 分别代表反铁磁态和超导态。 $T_s$  是向列相的转变温度

Fig. 1. Phase diagram of  $\text{BaFe}_2\text{As}_2$  with hole and electron doping. AF and SC represent antiferromagnetically ordered and superconducting states, respectively.  $T_s$  is the nematic structural phase transition temperature.

### 2.1 空穴型 $\text{Ba}_{1-x}\text{K}_x\text{Fe}_2\text{As}_2$ 中的反铁磁与超导共存

早期对  $\text{Ba}_{1-x}\text{K}_x\text{Fe}_2\text{As}_2$  研究的实验结果显示,反铁磁和超导虽然发生在同一个样品中,却发生在样品的不同区域,是相分离的 [16,17]。虽然之后的研究声称  $\text{BaFe}_2\text{As}_2$  被不同元素替代,如 Ca, K 替代 Ba [18–21], Co 替代 Fe [16,22],以及 Sm-FeAsO<sub>1-x</sub>F<sub>x</sub> [23] 中观测到反铁磁与超导共存,但对超导转变的判据都是磁化率这种宏观测量,而非微观测量手段,所以仍然无法区分相分离与微观共存。对于共存问题的研究既需要高质量的样品,又需要能够同时测量反铁磁有序和超导有序的微观测量手段。

核磁共振作为一种局域测量手段,非常适合共存问题的研究。它既对磁性敏感,同时又能探测超导有序引起的态密度的变化。本工作所用的  $\text{Ba}_{1-x}\text{K}_x\text{Fe}_2\text{As}_2$  单晶用自溶剂法生长, K 含量由能量色散 X 射线光谱(energy dispersive X-ray spectroscopy, EDX) 确定 [24]。样品的  $T_N$  和  $T_c$  总结在图 2 的相图中, AF 表示反铁磁相, SC 表示超导相。由图可见  $x = 0.23$  的样品处在欠掺杂区域,因

此适合于研究共存问题 [25]。

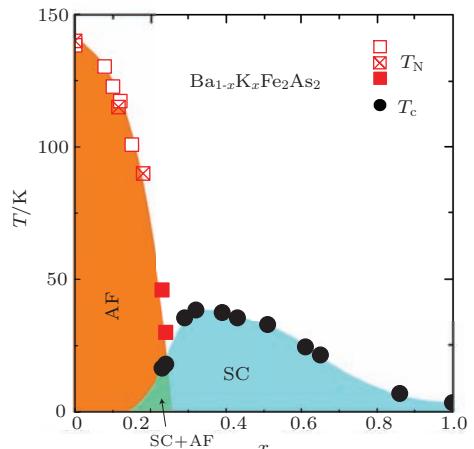


图 2  $\text{Ba}_{1-x}\text{K}_x\text{Fe}_2\text{As}_2$  相图。实心方块代表由 NMR 测得的奈尔温度  $T_N$ , 其他数据点从文献 [14,26] 中得到。圆圈代表由磁化率测得的超导转变温度  $T_c$ , AF 和 SC 分别代表反铁磁态和超导态

Fig. 2. Phase diagram of  $\text{Ba}_{1-x}\text{K}_x\text{Fe}_2\text{As}_2$ . The solid squares designate the Neel temperature  $T_N$  determined by NMR measurements, and the other data points for  $T_N$  are from Ref. [14] and [26]. The circles indicate superconducting transition temperature  $T_c$  determined from susceptibility measurements. AF and SC represent antiferromagnetically ordered and superconducting states, respectively.

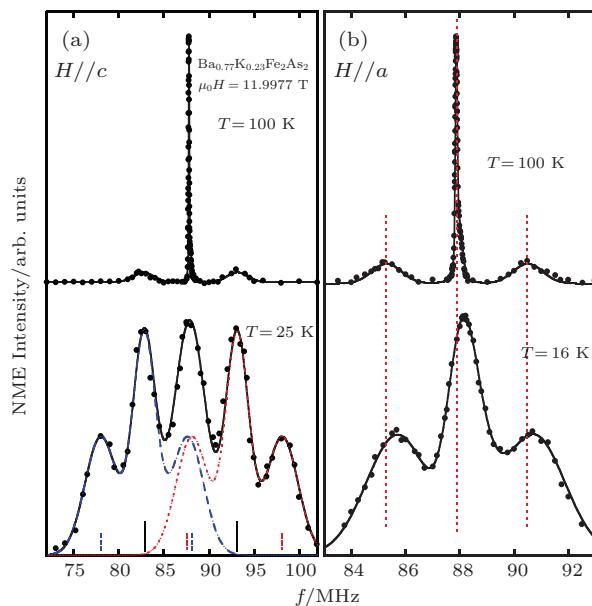


图3  $T_{\text{N}}$ 之上和 $T_{\text{N}}$ 之下 $^{75}\text{As}$ 核磁共振谱, 磁场方向分别为(a)  $H \parallel c$  和(b)  $H \parallel a$ , 为了便于区分,  $T = 100 \text{ K}$ 的谱被向上平移。(a) 蓝色虚线和红色点线拟合了内部磁场的存在引起劈裂后的两套谱, 黑色曲线是叠加后的谱形。短线标明了峰的位置; (b) 直虚线标明了 $T = 100 \text{ K}$ 谱的峰位

Fig. 3.  $^{75}\text{As}$  NMR spectra above and below  $T_{\text{N}}$  for (a)  $H \parallel c$  and (b)  $H \parallel a$ , respectively. The vertical axis for the  $T = 100 \text{ K}$  spectra is offset for clarity. (a) The blue dashed curve and the red dotted curve are the simulated two sets of spectra that are split by the internal magnetic field, and the black curve is the sum of the two sets of spectra. The short lines designate peak positions. (b) The straight dashed lines designate peak positions of the  $T = 100 \text{ K}$  spectrum.

图3是 $\text{Ba}_{0.77}\text{K}_{0.23}\text{Fe}_2\text{As}_2$ 的核磁共振谱, 图3(a)为磁场 $H \parallel c$ 方向, 图3(b)为磁场 $H \parallel ab$ 面。在100 K时样品处于顺磁态, 它的谱包含一个非常尖锐的中心峰和两侧的卫星峰。卫星峰是

由于核四极矩相互作用引起, 可由卫星峰间距得到核四极矩频率为5.06 MHz, 这个值略小于最佳掺杂样品的5.1 MHz<sup>[27]</sup>。在 $T_{\text{N}} = 46 \text{ K}$ 以下, 核磁共振谱发生了明显的变化。在反铁磁有序态, 中子散射实验已经证实Fe磁矩排列在 $ab$ 平面, 形成条纹相<sup>[28]</sup>。As原子有两个位置, 分别位于Fe平面的上和下, 如图4所示, 所以Fe原子磁矩在As原子处产生的内部磁场分别为平行或反平行于 $c$ 方向。当外加磁场 $H \parallel c$ 时, 在两个As原子处的有效磁场分别为 $H_c^{\text{eff}} = H_0 \pm H_{\text{int}}$ , 这将导致谱劈裂成两套。每一套都包含一个中心峰和两个卫星峰, 其中一套向高频移动, 对应处在Fe平面之上的As原子, 另一套向低频移动, 对应处在Fe平面之下的As原子。而当 $H \parallel a$ 时,  $H_a^{\text{eff}} = \sqrt{H_0^2 + H_{\text{int}}^2}$  将导致频谱整体向高频发生移动<sup>[29]</sup>。图3中所示的谱正如理论上预测的, 对于 $H \parallel c$ 方向, 中心峰和两个卫星峰都发生了劈裂, 红色和蓝色虚线分别为两套拟合曲线, 由于谱的交叠最终形成5个峰; 对于 $H \parallel ab$ 面, 三个峰向高频移动。这表明在 $T_{\text{N}} = 46 \text{ K}$ 以下, As原子确实感受到了内部磁场。

通过 $H \parallel a$ 方向谱的移动或 $H \parallel c$ 方向谱的劈裂可以计算内部磁场的大小, 其温度依赖关系画在图5中。在 $T_{\text{N}}$ 以下内部磁场迅速增大, 在9 K时趋于饱和, 达到0.8 T, 约为母体的一半, 母体 $T_{\text{N}} \sim 140 \text{ K}$ ,  $H_{\text{int}} = 1.5 \text{ T}$ 。内部磁场与Fe磁矩成正比,  $\mathbf{H}_{\text{int}} = \mathbf{A}_{\text{hf}} \cdot \mathbf{m}$ , 其中 $\mathbf{m}$ 为Fe的磁矩,  $\mathbf{A}_{\text{hf}}$ 是超精细耦合常数。假设 $\mathbf{A}_{\text{hf}}$ 与母体相同<sup>[29]</sup>, 则可计算Fe的磁矩, 见图5右侧坐标。在9 K时为 $0.45 \mu_{\text{B}}$ , 也只有母体的一半。

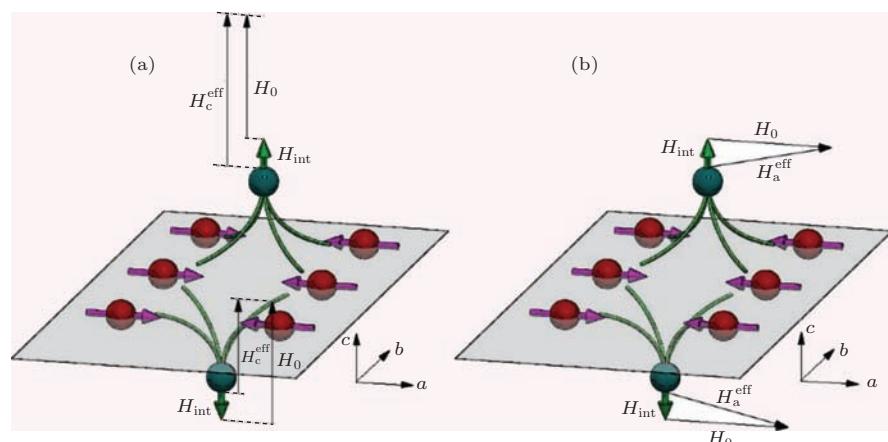


图4 As位置处的有效磁场 (a) 外加磁场沿 $c$ 轴; (b) 外加磁场沿 $a$ 轴

Fig. 4. The effective magnetic field ( $H^{\text{eff}}$ ) at the As-sites, with the external field ( $H_0$ ) applied along the  $c$ -axis (a) and the  $a$ -axis (b), respectively.

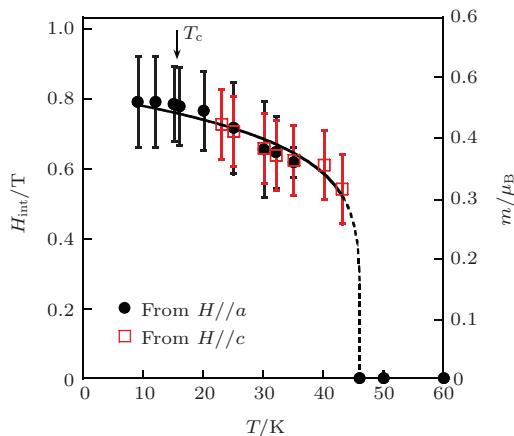


图5 内部磁场  $H_{\text{int}}$ (左侧坐标) 和磁矩(右侧坐标) 的温度依赖关系. 圆点和方点分别由  $H//a$  和  $H//c$  计算得到, 曲线为示意

Fig. 5. Temperature dependence of the internal magnetic field  $H_{\text{int}}$  (left axis) and the ordered magnetic moment (right axis). The circles and open squares are deduced from the spectra with  $H//a$  and  $H//c$ , respectively. The curve is a guide to the eyes.

至此, 已经证明了样品存在反铁磁相变, 并得到了内部磁场和磁矩的值. 对于共存问题的研究, 接下来的工作是在反铁磁相中探测超导相变. 判断样品是否进入超导态较常用的方法是测量磁化率, 由抗磁性大小推算超导体体积百分数. 然而在研究共存问题时, 磁化率的测量并不能区分相分离与微观共存. 核磁共振测量的自旋晶格弛豫率  $1/T_1$  与态密度成正比, 因此会在超导相变处发生突变. 并且如果样品存在多种相时, 可以通过频率来选择仅测量其中一种相的  $T_1$ , 因此可以避免不同相之间的干扰. 当发生反铁磁相变时,  $H//a$  方向的频谱会向高频移动, 选取在反铁磁相对应的频率位置探测时, 所得到的必然是反铁磁相的  $T_1$ .

图6是在  $H//a$  的中心峰测得的  $1/T_1$  的温度依赖关系. 随着降温,  $1/T_1$  先上升, 在  $T_N = 46$  K 处形成一个峰, 是由于磁矩的临界慢化(critical slowing-down)引起的. 在  $T_N$  以下  $1/T_1$  减小并趋于与温度呈线性关系, 在  $T_c(12 \text{ T})=16$  K 以下,  $1/T_1$  出现另一个更加迅速的下降, 呈现  $T^3$  关系, 在更低温则趋缓. 因为在  $T_N$  以下  $1/T_1$  的测量是在发生移动后的峰位测得, 该频率位置对应反铁磁相, 所以在  $T_c$  以下  $1/T_1$  的减小说明与原子核耦合的电子既形成磁有序又产生超导电性. 以上的结果直接证明了反铁磁有序与超导是微观共存的. 这种大磁矩和超导的共存和含 Ce 的重费米子体系中的情形不同. 那里, 共存态下的磁矩非常小, 不到

$0.1 \mu_B$  [30]. 两者的不同可以理解成能带结构的差异. 含 Ce 的重费米子体系是单带体系, 而铁基超导体是多能带体系 [31]. 可以认为,  $\text{Ba}_{0.77}\text{K}_{0.23}\text{Fe}_2\text{As}_2$  共存态下的大磁矩起源于局域性较强的轨道, 而超导则主要由巡游性较强的 d 轨道电子负责的. 当然, 所谓局域性较强的电子和巡游性较强的电子是相对而言的, 他们是强耦合在一起的.

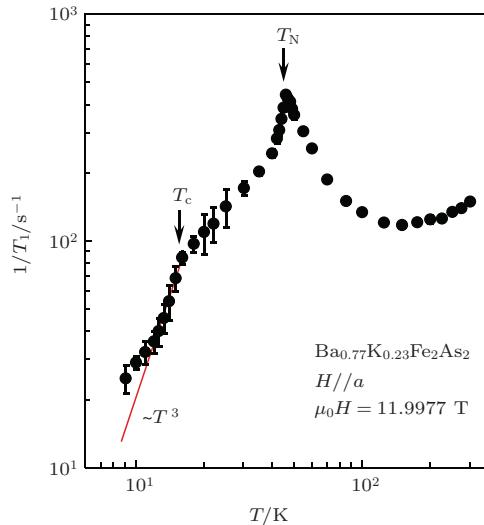


图6 自旋晶格弛豫率  $1/T_1$  的温度依赖关系, 直线表示  $1/T_1 \sim T^3$  的关系.

Fig. 6. The temperature dependence of the spin-lattice relaxation rate  $1/T_1$ . The straight line indicates the  $1/T_1 \sim T^3$  relation.

## 2.2 电子型 $\text{BaFe}_{2-x}\text{Ni}_x\text{As}_2$ 中的反铁磁与超导共存

反铁磁与超导共存并非空穴型掺杂所独有, 在电子型掺杂相图中同样也存在反铁磁与超导微观共存区域 [32]. 探测的方法与空穴型掺杂样品的实验相同, 首先通过扫描频率得到  $\text{BaFe}_{2-x}\text{Ni}_x\text{As}_2$  的核磁共振谱, 如图7所示. (a), (b) 分别为  $x = 0.05$  和  $x = 0.07$  两个样品的频谱, 反铁磁转变温度  $T_N$  以上中心峰很窄, 证明样品质量很好. 对于  $x = 0.05$  样品, 当进入磁有序态之后, 与空穴型样品相似, 谱劈裂成两套如图7(a)中直线标记的位置. 但是由于 Ni 掺杂在 Fe 位, 会导致内部磁场  $H_{\text{int}}$  有一定的分布, 所以谱展宽成两个鼓包. 随着掺杂,  $H_{\text{int}}$  减小并且分布范围更宽, 使  $x = 0.07$  的频谱在  $T_N = 48$  K 以下形成一个非常宽的峰. 对于两个样品的谱, 可以假设  $H_{\text{int}}$  为高斯分布进行拟合, 如图中红色曲线所示. 拟合得到的内部磁场

平均值在  $T = 15$  K,  $x = 0.05$  为  $\langle H_{\text{int}} \rangle = 0.75$  T;  $T = 25$  K,  $x = 0.07$  为  $\langle H_{\text{int}} \rangle = 0.39$  T. 使用母体的超精细耦合常数可以得到磁矩平均值  $\langle S \rangle$ , 如图 8 所示, 磁矩在  $T_N$  以下持续增大, 符合二级相变的特征.  $x = 0.05$  样品的磁矩饱和值为  $0.43 \mu_B$ ,  $x = 0.07$  样品的磁矩为  $0.24 \mu_B$ . 磁矩小于空穴掺杂的  $\text{Ba}_{1-x}\text{K}_x\text{Fe}_2\text{As}_2$ , 这可能是由于 Ni 直接进入 Fe 原子位置, 所以更有效地抑制了磁有序. 进一步掺杂, 达到  $x = 0.09$  和  $x = 0.10$  时, 没有观测到反

铁磁相变的迹象, 如图 7(c) 所示, 既没有劈裂也没有展宽.

磁有序开始的温度也可以由自旋晶格弛豫率得到. 图 7(d) 展示  $x = 0.07$  的  $1/T_1$ , 它是在图 7(b) 中箭头标明的频率进行的测量, 目的是为了避开顺磁态的信号位置, 即便有顺磁态信号残留也不会影响测量. 可以看到在  $T_N = 48$  K 处有一个明显的峰, 这是由磁矩的临界慢化引起的. 在  $T_N$  以下,  $1/T_1$  减小, 在  $T_c$  以下  $1/T_1$  进一步地快速减小, 直

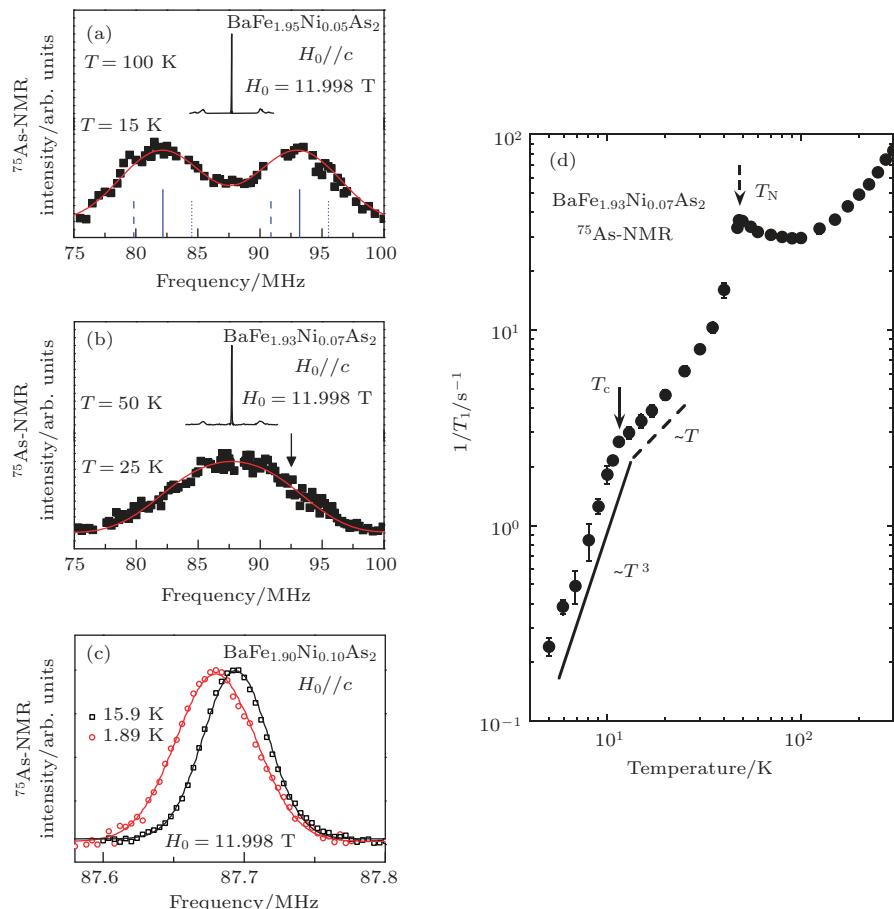


图 7 核磁共振谱和  $1/T_1$  温度依赖关系,  $^{75}\text{As}$  核磁共振谱为磁场  $H_0 = 11.998$  T 沿  $c$  方向 (a)  $x = 0.05$  样品在  $T_N = 74$  K 上下的谱, 实线、虚线和点线分别标记在内部磁场形成后的中心峰、左卫星峰和右卫星峰的位置; (b)  $x = 0.07$  样品在  $T_N = 48$  K 上下的谱, 红色的曲线代表使用高斯分布的内部磁场拟合结果, 黑色箭头指明在  $T_N$  以下  $T_1$  测量的频率位置; (c)  $x = 0.10$  样品在  $T_c$  上下的中心峰, 谱在  $T = 1.89$  K 的移动是由于奈特位移在超导态减小; (d)  $x = 0.07$  的  $1/T_1$  温度依赖关系, 实线和虚线分别是  $T^3$  和  $T$  的温度关系. 实线和虚线箭头指明  $T_c$  和  $T_N$ ,  $1/T_1$  的误差棒为拟合恢复曲线的标准方差.

Fig. 7. NMR spectra with different doping and temperature dependence of  $1/T_1$ .  $^{75}\text{As}$ -NMR spectra were obtained by sweeping the frequency at a fixed external field  $H_0 = 11.998$  T applied along the  $c$  axis. (a) The spectra above and below  $T_N = 74$  K for  $x = 0.05$ . Solid, dashed and dotted lines indicate the position of the central transition, left-and right-satellites, respectively, when an internal magnetic field develops; (b) the spectra above and below  $T_N = 48$  K for  $x = 0.07$ . The red curve represents the simulations by assuming a Gaussian distribution of the internal magnetic field. The black arrow indicates the position at which  $T_1$  was measured below  $T_N$ ; (c) the central transition line at and below  $T_c$  for  $x = 0.10$ . The spectrum shift at  $T = 1.89$  K is due to a reduction of the Knight shift in the superconducting state; (d) the temperature dependence of  $1/T_1$  for  $x = 0.07$ . The solid and dashed lines show the  $T^3$ - and  $T$ -variation, respectively. The solid and dashed arrows indicate  $T_c$  and  $T_N$ , respectively. The error bar in  $1/T_1$  is the standard deviation in fitting the nuclear magnetization recovery curve.

到5 K都呈现 $T^3$ 温度依赖关系。这个显著的减小是由于超导能隙在反铁磁有序态打开。与空穴掺杂的一样，这是超导与反铁磁有序微观共存的有力证据。

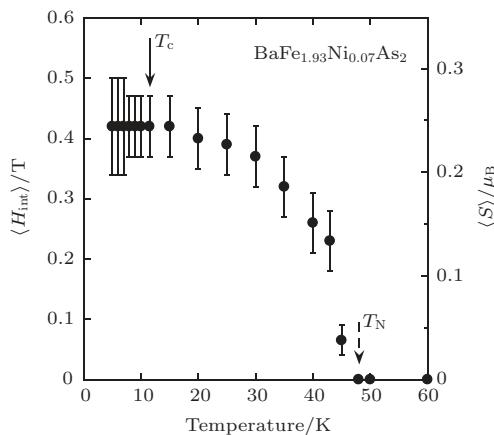


图8  $x = 0.07$  内部磁场的温度依赖关系。内部磁场平均值  $\langle H_{int} \rangle$  标在左侧坐标轴, 磁矩平均值  $\langle S \rangle$  标在右侧坐标轴。实线和虚线箭头分别标记  $T_c$  和  $T_N$ 。误差棒表示能够拟合谱线的最大和最小值

Fig. 8. Temperature dependence of the averaged internal magnetic field  $\langle H_{int} \rangle$  (left vertical axis) and the averaged ordered moment  $\langle S \rangle$  (right vertical axis) for  $x = 0.07$ . The solid and dashed arrows indicate  $T_c$  and  $T_N$ , respectively. The error bar represents the absolute maxima (minima) that can fit a spectrum.

### 2.3 共存态下的奇异超导性质

在共存区域的超导电性与普通超导态的性质不同。最佳掺杂样品  $Ba_{0.68}K_{0.32}Fe_2As_2$  的  $1/T_1$  在  $T_c$  以下呈现  $e$  指数的温度依赖关系, 如图9所示。而共存区样品的  $1/T_1$  在  $T_c$  以下温度依赖关系则较弱, 如图6所示。这种差异很难用杂质散射来解释, 因为两个样品的谱宽都很窄, 约为83 kHz, 说明两个样品纯净度相同。一种可能性是在共存区域磁矩的涨落对超导态  $1/T_1$  贡献很大, 以前并未有相关的探索。另一种可能的解释包含两种理论: 其一是奇频率的超导态, 它是无能隙的, 这种态是在临界点附近的重费米子中被提出<sup>[33]</sup>; 另一种可能性是, 有理论认为在与磁有序共存的超导态, 具有节点的超导能隙更稳定<sup>[34]</sup>。

尽管共存态下的奇异超导电性的根源还不清楚, 仍需今后更多的研究工作进行探讨。但是磁有序与超导共存这一事实, 对超导配对的对称性有了制约, 它可以为判断超导能隙对称性提供判据。理

论研究发现, 传统的  $s^{++}$  波超导态无法与反铁磁有序共存, 而不同能带间具有相反相位的  $s^{+-}$  波超导态可以与反铁磁共存<sup>[18]</sup>。因此在铁基超导体欠掺杂区域发现共存态, 说明至少在欠掺杂区域超导电子是  $s^{+-}$  波配对。

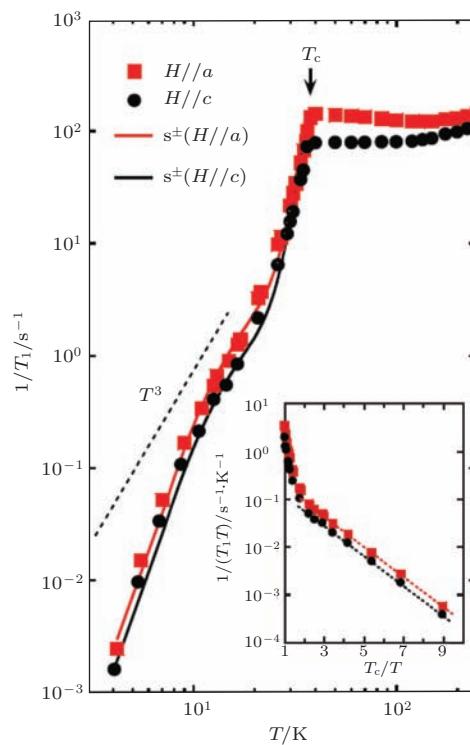


图9 最佳掺杂样品  $Ba_{0.68}K_{0.32}Fe_2As_2$  的  $1/T_1$  随温度的变化

Fig. 9. The temperature dependence of  $1/T_1$  for the optimal doped  $Ba_{0.68}K_{0.32}Fe_2As_2$ .

### 2.4 电子型和空穴型122体系中的磁量子临界性

对量子临界点与量子临界行为的讨论将结合电阻和核磁共振两种测量手段。图10为  $BaFe_{2-x}Ni_xAs_2$  的面内电阻率, 拟合曲线形式为  $\rho = \rho_0 + AT^n$ 。对于具有费米液体行为的正常金属, 指数  $n = 2$ 。但是在  $0.09 < x < 0.14$  样品中发现,  $n < 1.5$ , 这是明显的非费米液体行为。更明显的是, 在  $x_{c1} = 0.10$  处呈现温度的线性行为 ( $n = 1$ ), 而在  $x_{c2} = 0.14$  处出现另一个极小值  $n = 1.1$ 。有趣的是在这两点剩余电阻率  $\rho_0$  和系数  $A$  出现极大值, 如图11(a)所示。指数  $n$  随掺杂及温度的变化画在图11(b)中。

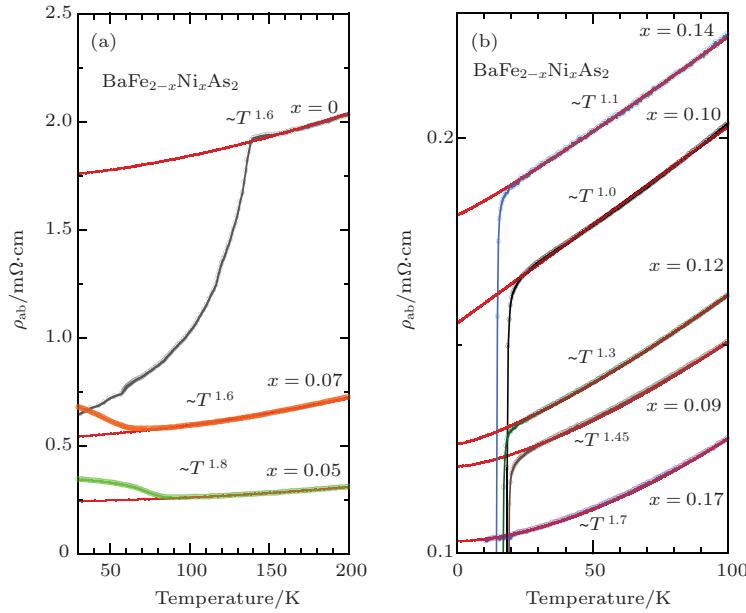
图 10 面内电阻率, 拟合曲线为  $\rho = \rho_0 + AT^n$ 

Fig. 10. The in-plane electrical resistivity. The data in the normal state are fitted by the equation  $\rho = \rho_0 + AT^n$ .

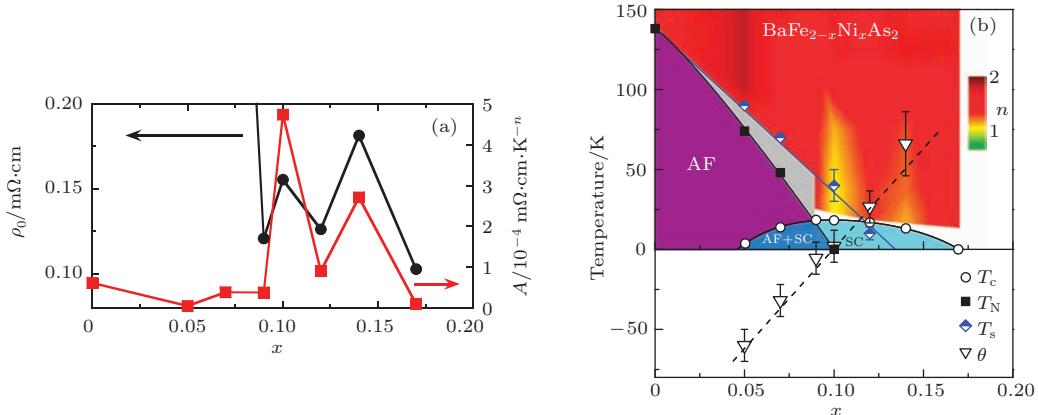


图 11 (a) 剩余电阻率  $\rho_0$  和系数  $A$  随 Ni 掺杂的变化; (b)  $\text{BaFe}_{2-x}\text{Ni}_x\text{As}_2$  的相图。 $T_N$  和  $\theta$  分别从核磁共振谱和  $1/(T_1 T)$  得到。AF 和 SC 分别用来标记反铁磁有序和超导态。正常态的颜色代表指数电阻拟合公式  $\rho = \rho_0 + AT^n$  中的  $n$ 。在  $x = 0.10$  的黄色范围为线性行为。 $\theta$  的误差是拟合  $1/(T_1 T)$  时的标准方差,  $T_s$  的误差为核磁共振谱测量时的温度间隔

Fig. 11. (a) The residual resistivity  $\rho_0$  and the coefficient  $A$  as a function of Ni-doping content  $x$ ; (b) the phase diagram of  $\text{BaFe}_{2-x}\text{Ni}_x\text{As}_2$ . The  $T_N$  and  $\theta$  are obtained from NMR spectra and  $1/(T_1 T)$ , respectively. AF and SC denote the antiferromagnetically ordered and the superconducting states, respectively. The solid and dashed lines are the guides to the eyes. Colors in the normal state represent the evolution of the exponent  $n$  in the resistivity fitted by  $\rho = \rho_0 + AT^n$ . The light yellow region at  $x = 0.10$  shows that the resistivity is  $T$ -linear. The error bar for  $\theta$  is the standard deviation in the fitting of  $1/(T_1 T)$ . The error bar for  $T_s$  represents the temperature interval in measuring the NMR spectra.

图 12 是  $0.05 < x < 0.14$  样品的  $1/(T_1 T)$  结果。 $1/(T_1 T)$  先随着温度下降而减小, 到 150 K 左右开始随温度下降而上升, 直到  $T_c$  或  $T_N$ 。低温部分的增长是因为反铁磁自旋涨落 ( $[1/(T_1 T)]_{\text{AF}}$ ), 高温部分的减小是因为能带内影响 ( $[1/(T_1 T)]_{\text{intra}}$ ), 即  $\frac{1}{T_1 T} = \left(\frac{1}{T_1 T}\right)_{\text{AF}} + \left(\frac{1}{T_1 T}\right)_{\text{intra}}$ 。同样的行为也在  $\text{BaFe}_{2-x}\text{Co}_x\text{As}_2$  中观察到<sup>[35]</sup>。二维巡游电子系统在量子临界点附近可以用自治的重整

化理论描述<sup>[16]</sup>, 它描述的  $1/(T_1 T)$  与交错磁化率  $\chi''(Q)$  成比例。因为  $\chi''(Q)$  符合居里外斯定律, 所以  $[1/(T_1 T)]_{\text{AF}} = a/(T + \theta)$ 。能带内贡献来自费米面附近的态密度, 它与奈特位移  $K_s$  符合科林加定则  $K_s^2 T_1 T = \text{constant}$ 。而奈特位移与温度的关系为  $K = K_0 + K_s \exp[-E_g/(k_B T)]$ , 如图 12(b) 所示, 其中  $K_0$  是不随温度变化的, 而第二项是由下沉到费米面以下的能带通过热激活

激发到费米面之上所贡献的, 通过拟合奈特位移就可以得到  $E_g$ . 相应地, 这部分贡献所对应的  $[1/(T_1 T)]_{\text{intra}} = b + c \times \exp[-2E_g/(k_B T)]$ . 于是我们就可以通过拟合  $1/(T_1 T)$  得到  $\theta$ , 并将所得到的结果画入了图 11(b) 中. 我们发现在  $1/T_1$  处  $T_c$  为 0. 而且如图 13 所示,  $1/T_1$  在此处  $T_c$  以上几乎为常数的行为也印证了这点.  $\theta = 0$  意味着交错磁化率在  $T = 0$  处发散, 说明  $x = 0.10$  是一个磁性量子临界点. 因此, 电阻率中指数  $n = 1$  正是由量子临界点引起.

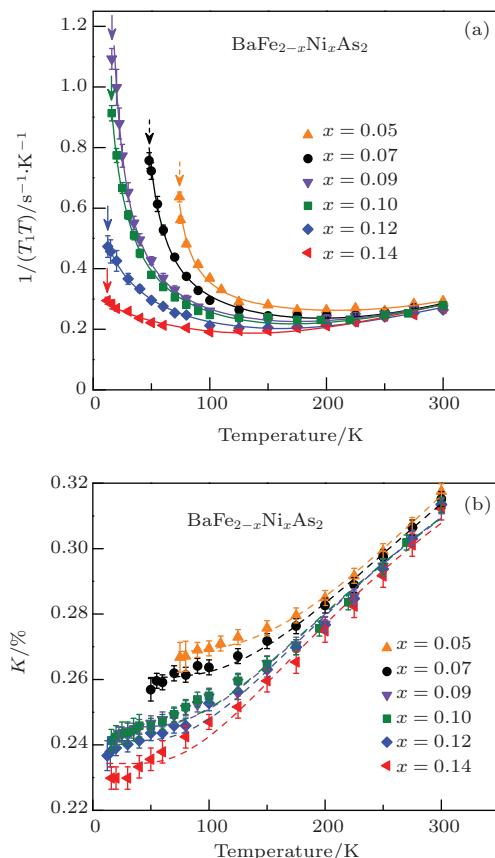


图 12 (a)  $1/(T_1 T)$  的温度依赖关系; (b) 不同掺杂  $x$  的奈特位移  $K$ . 实线是拟合曲线, 形式为  $1/(T_1 T) = a/(T + \theta) + b + c \times \exp[-2E_g/(k_B T)]$ . 虚线拟合公式为  $K = K_0 + K_s \times \exp[-E_g/(k_B T)]$ . 实线和虚线箭头分别指示  $T_c$  和  $T_N$ .  $1/(T_1 T)$  的误差棒为拟合恢复曲线的标准方差,  $K$  的误差棒为核磁共振测量点的间隔

Fig. 12. (a) Temperature dependence of  $1/(T_1 T)$  and (b) the Knight shift  $K$  for various  $x$ . The solid line is a fitting of  $1/(T_1 T) = a/(T + \theta) + b + c \times \exp[-2E_g/(k_B T)]$ . The dashed curve is a fit to  $K = K_0 + K_s \times \exp[-E_g/(k_B T)]$ . The solid and dashed arrows indicate  $T_c$  and  $T_N$ , respectively. The error bar for  $1/(T_1 T)$  is the standard deviation in fitting the nuclear magnetization recovery curve. The error bar for  $K$  is estimated by assuming that the spectrum peak uncertainty equals the point (frequency) interval in measuring the NMR spectra.

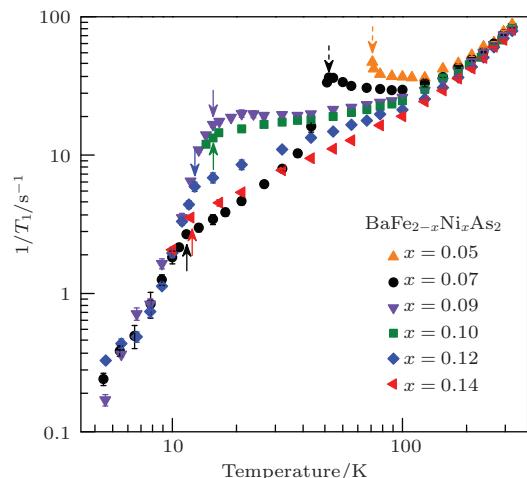


图 13 不同组分  $\text{BaFe}_{2-x}\text{Ni}_x\text{As}_2$  的自旋晶格弛豫率  $1/T_1$  温度依赖关系. 实线和虚线箭头分别指示  $T_c$  和  $T_N$ . 误差棒是拟合核磁化恢复曲线的标准方差

Fig. 13. The temperature dependence of the spin-lattice relaxation rate  $1/T_1$  for various  $x$  of  $\text{BaFe}_{2-x}\text{Ni}_x\text{As}_2$ . The solid and dashed arrows indicate  $T_c$  and  $T_N$ , respectively. The error bar is the standard deviation in fitting the nuclear magnetization recovery curve.

不仅在电子型掺杂  $\text{BaFe}_2\text{As}_2$  中存在量子临界行为, 在空穴型掺杂样品中也是如此. 但是由于存在两种载流子, 其中一种电阻不随温度变化, 导致电阻在高温出现饱和趋势, 掩盖了电阻的线性行为<sup>[36]</sup>, 所以无法利用电阻判断量子临界点. 而核磁共振测量的  $1/T_1$  并不会受此影响, 因此可以判断量子临界行为. 图 9 为最佳掺杂样品  $\text{Ba}_{0.68}\text{K}_{0.32}\text{Fe}_2\text{As}_2$  的  $1/T_1$  温度依赖关系. 在 150 K 以下,  $1/T_1$  几乎不随温度变化, 按照前面使用过的居里外斯公式  $1/(T_1 T) = a/(T + \theta)$  可知  $\theta = 0$ , 说明在最佳掺杂处也存在一个量子临界点. 在电子型和空穴型的最佳掺杂位置都存在量子临界点, 这暗示着超导电性与量子临界点存在着紧密的联系.

在  $\text{Ba}_{1-x}\text{K}_x\text{Fe}_2\text{As}_2$  和  $\text{BaFe}_{2-x}\text{Ni}_x\text{As}_2$  体系中, 调控的参数是载流子浓度. 除此之外, 曾经发现调控化学压力也可实现量子临界点<sup>[37,38]</sup>. 在  $\text{BaFe}_2(\text{As}_{1-x}\text{P}_x)_2$  中用 P 替换 As 可实现磁量子临界点. 所以, 量子临界现象在 122 体系中是非常普遍的.

## 2.5 LaFeAsO<sub>1-x</sub>F<sub>x</sub> 中的磁量子临界性

$\text{LaFeAsO}_{1-x}\text{F}_x$  是最早发现的铁基超导体, 其相图如图 14 所示. 它从属的  $R\text{FeAsO}_{1-x}\text{F}_x$  ( $R$  为稀土元素) 体系保持着铁基超导体的最高超导温度

的记录。但由于无法生长宏观尺度的单晶样品，实验样品主要以多晶为主，因此该体系的研究工作相对于122体系而言较少。

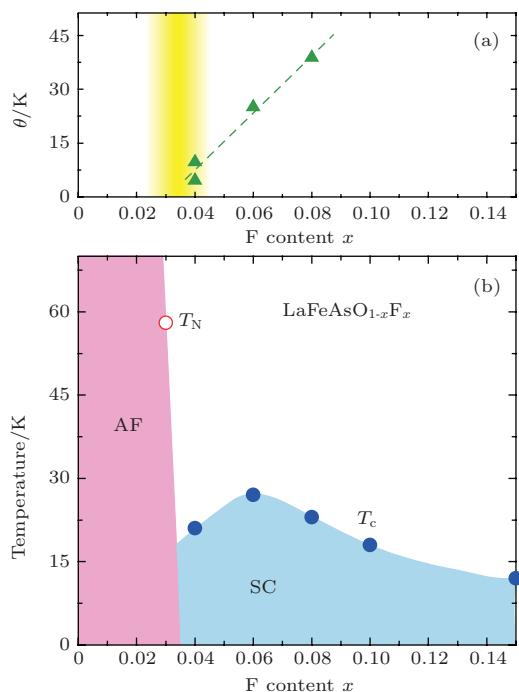


图14  $\text{LaFeAsO}_{1-x}\text{F}_x$  的相图, AF 和 SC 分别代表反铁磁和超导态 (a)  $\theta$  随  $x$  的变化, 虚线是示意线; (b) 由NQR测量得到的  $T_N$  和  $T_c$  随  $x$  的变化

Fig. 14. Phase diagram of  $\text{LaFeAsO}_{1-x}\text{F}_x$  (AF and SC represent antiferromagnetically ordered and superconducting states, respectively): (a)  $x$  dependence of  $\theta$ , and the dotted line is a guide to the eyes; (b)  $x$  dependence of  $T_N$  and  $T_c$  determined by NQR measurements.

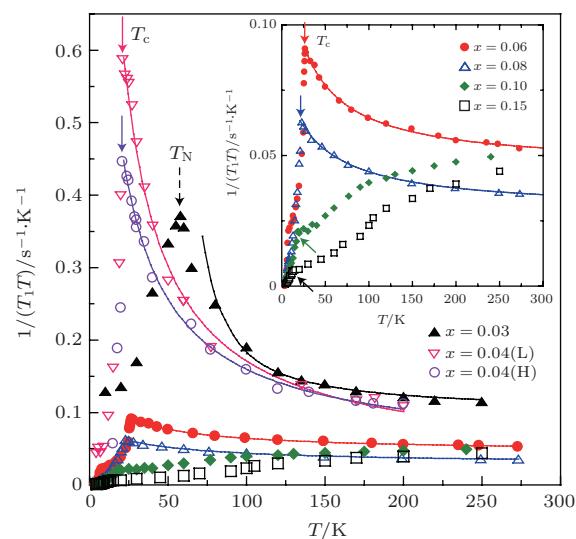


图15 不同  $x$  的  $1/(T_1T)$  温度依赖关系.  $T_N$  或  $T_c$  以上的曲线是按 AFSF 理论拟合的, 插图是  $0.06 \leq x \leq 0.15$  样品的放大部分

Fig. 15. Temperature dependence of  $1/(T_1T)$  for various  $x$ . The curves above  $T_N$  or  $T_c$  are fits to the antiferromagnetic spin fluctuations theory. The inset is the enlarged part for  $0.06 \leq x \leq 0.15$ .

铁基超导体发现之初, 实验给出的  $\text{RFeAsO}_{1-x}\text{F}_x$  相图中  $T_N$  随掺杂逐渐减小, 但到某个掺杂量时突然消失, 因此不会形成量子临界点<sup>[39]</sup>. 通过选取高质量的样品和精细的测量, 核磁共振实验证明, 在  $\text{LaFeAsO}_{1-x}\text{F}_x$  中也存在量子临界点<sup>[40]</sup>. 所使用的实验方法与之前讨论的空穴掺杂和电子掺杂  $\text{BaFe}_2\text{As}_2$  相似, 可以通过正常态的行为判断量子临界点, 不再赘述. 图15为不同掺杂样品  $1/(T_1T)$  的温度依赖关系, 利用居里外斯公式  $[1/(T_1T)]_{\text{AF}} = a/(T + \theta)$  拟合得到  $\theta$  画于图14(a)中. 由于  $x = 0.03$  样品存在结构相变, 所以在接近  $T_N$  时不能很好拟合, 而其他成分的样品不存在结构相变, 因此可以很好得拟合. 可见  $\theta$  在  $x = 0.035$  处趋于0, 所以该点应该是反铁磁的量子临界点.

### 3 向列量子临界点

铁基超导体母体除了反铁磁相变, 还存在一个从四方相到正交相的结构相变. 随着掺杂, 这种结构相变如何演化并没有深入的研究. 在  $\text{BaFe}_{2-x}\text{Co}_x\text{As}_2$  中低掺杂区域曾有结构相变被观测到, 但高掺杂区域相变温度如何变化却不清楚. 在  $\text{BaFe}_{2-x}\text{Ni}_x\text{As}_2$  中, 核磁共振测量发现结构相变温度  $T_s$  随着掺杂逐渐减小, 并最终趋于0形成一个结构相变的量子临界点<sup>[30]</sup>. 核磁共振之所以能够探测结构相变, 是因为<sup>75</sup>As原子核具有核四极矩, 它与电场梯度  $V_{\alpha\alpha}$  ( $\alpha = x, y, z$ ) 耦合, 而结构相变会明显改变电场梯度, 所以<sup>75</sup>As谱对结构相变非常敏感. 这种变化在母体  $\text{BaFe}_2\text{As}_2$ <sup>[27]</sup> 中曾被证实.

当外加磁场  $H_0$  平行于  $ab$  平面时, 核磁共振频率可表示为

$$f_{m \leftrightarrow m-1}(\varphi, \eta) = f_0 + \frac{1}{2}\nu_Q \left( m - \frac{1}{2} \right) [\eta \cdot \cos(2\varphi - 1)], \quad (1)$$

其中  $m = 3/2, 1/2, -1/2$ ,  $\varphi$  是磁场与  $a$  轴的夹角,  $\nu_Q$  是核四极矩共振频率, 它正比于电场梯度,  $\eta \equiv |V_{xx} - V_{yy}|/V_{zz}$ . 对于四方结构,  $\eta = 0$ , 而对正交结构  $a$  轴和  $b$  轴不等价, 导致电场梯度各向异性,  $\eta > 0$ . 因此, 对于孪晶, 当磁场  $H_0 // a$  时 ( $\varphi = 0^\circ$ ) 和  $H_0 // b$  时 ( $\varphi = 90^\circ$ ) 将给出不同的  $f_{m \leftrightarrow m-1}(\varphi, \eta)$ , 导致卫星峰劈裂, 示意图16给出了谱劈裂的方式. 同样对于电子向列序也是如此, 例如轨道有序, 电场梯度也易受电子轨道占据的变化.

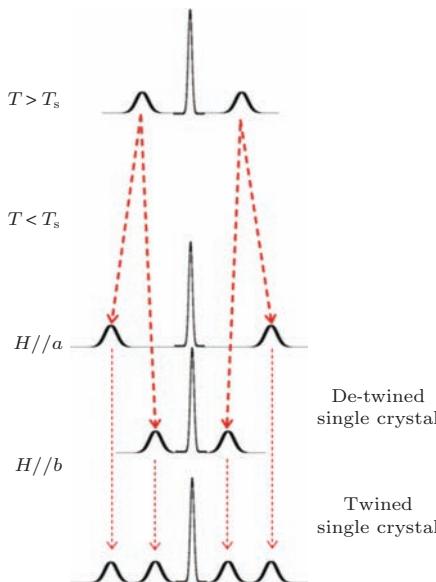


图 16 向列序形成后的谱的示意图. 形成向列序后,  $H//a$  与  $H//b$  卫星峰位不同, 在李晶中二者叠加而形成 4 个卫星峰

Fig. 16. Schematic of NMR spectra in the nematic state. The satellite peaks for  $H//a$  and  $H//b$  become un-identical. For a twinned single crystal, two sets of satellite peaks will be observed.

如图 17 所示, 对于  $x = 0.05$  和  $0.07$  在高温只有一对卫星峰, 在  $T_s$  以下, 卫星峰劈裂. 这证明有结构相变发生, 核磁共振谱劈裂反映出孪生的正交相的形成. 通过谱劈裂的大小可以得到  $\eta$ , 总结在图 18 中, 可见  $\eta$  在  $T_s$  以下迅速增大并趋于饱和. 相变温度对于  $x = 0.05$  为  $T_s = 90$  K, 对于  $x = 0.07$  为  $T_s = 70$  K, 这与电阻的上翘温度一致, 如图 19 所示. 这一特征持续到  $x = 0.10$  和  $x = 0.12$ . 对于最佳掺杂  $x = 0.10$ , 谱在  $40 \text{ K} \leq T \leq 60 \text{ K}$  几乎无变化, 但是突然在  $20 \text{ K}$  变化. 这说明结构相变发生在  $T_s \sim 40 \text{ K}$ . 对于  $x = 0.12$ , 两个卫星峰在高温不变, 在  $10 \text{ K}$  以下朝相反的方向平移. 在  $6 \text{ K}$ , 每一个展宽的峰都可以用两个峰的叠加来拟合. 这是首次在  $T_c$  以下观测到结构相变. 对于  $x = 0.14$ , 直到  $4.5 \text{ K}$  也没有观测到谱的展宽, 由于奈特位移在超导态的减小, 谱同向移动. 这说明在  $x_{c2} = 0.14$  时,  $T_s = 0$ . 由核磁共振得到的  $T_s$  总结在图 11(b) 的相图中.

因此, 电阻率的指数在  $x_{c2}$  的极小值  $n = 1.1$  暗示着与结构量子临界点相伴的量子临界涨落. 由二维  $q = (0, 0)$  主导的涨落将给出  $n = 4/3$ , 此处  $n = 1.1$  小于该值. 所以在  $x_{c2}$  处的涨落是无法用现有的理论解释的. 这预示着  $x_{c2}$  是个新颖的量子临界点.

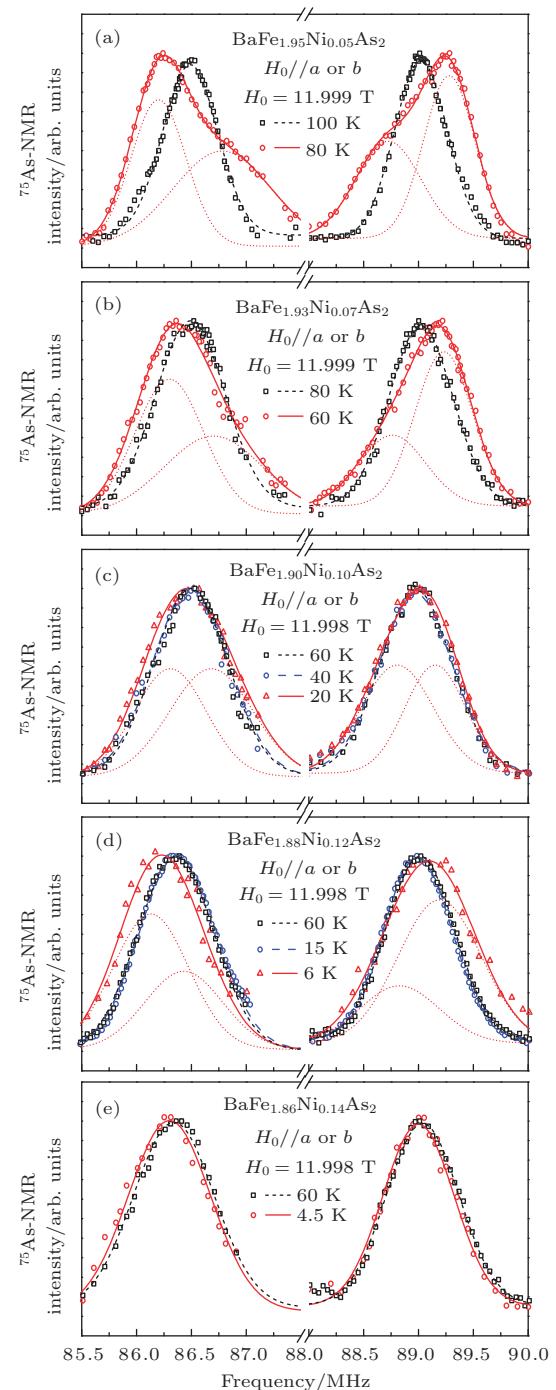


图 17 (a)–(d)  $x = 0.05, 0.07, 0.10$  和  $0.12$  样品, 外加磁场  $H_0$  平行于  $a$  轴或  $b$  轴方向时  $T_s$  之上和之下的卫星峰. 峰在  $T_s$  以下由于电场梯度的变化而劈裂. 所有  $T_s$  之上的谱用单一的高斯函数拟合, 但是  $T_s$  之下要用两个高斯函数拟合. (e)  $x = 0.14$  的卫星峰, 它向低频移动, 这是由于奈特位移的减小所致, 参见图 7(c)

Fig. 17. (a)–(d) The satellite peaks with the external field  $H_0$  applied along the  $a$  axis or  $b$  axis above and below  $T_s$  for  $x = 0.05, 0.07, 0.10$  and  $0.12$ . The peaks split below  $T_s$  due to a change in EFG. All the spectra are fitted by a single Gaussian function above  $T_s$ , but by two Gaussian functions below  $T_s$ . (e) The satellite peaks for  $x = 0.14$ , which only shift to the same direction due to a reduction of the Knight shift as in Fig. 7 (c).

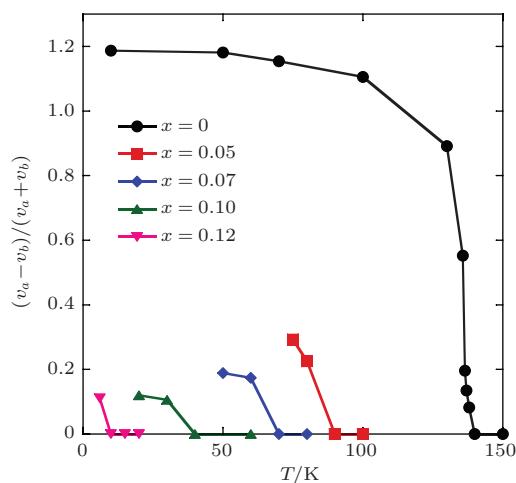


图 18 不同掺杂  $\text{BaFe}_{2-x}\text{Ni}_x\text{As}_2$  的各向异性  $\eta$  温度依赖关系

Fig. 18. Temperature dependence of the EFG asymmetry parameter  $\eta$  for  $\text{BaFe}_{2-x}\text{Ni}_x\text{As}_2$ .

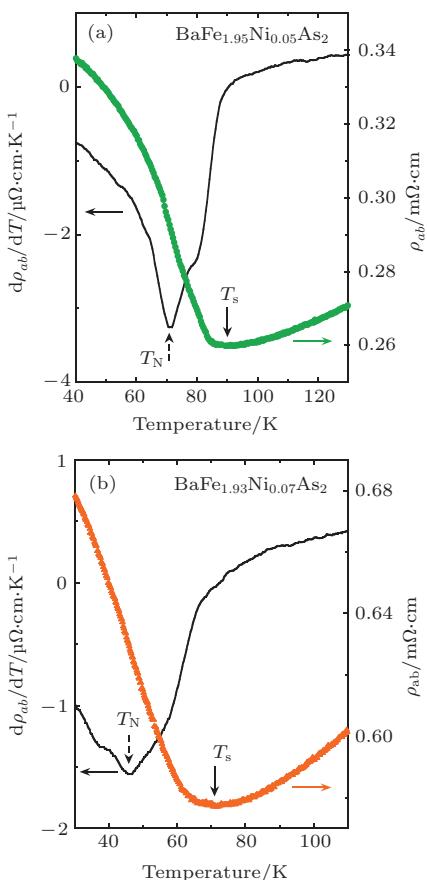


图 19 面内电阻率  $\rho_{ab}$  (右侧坐标轴) 和其导数 (左侧坐标轴)  
(a)  $x = 0.05$  和 (b)  $x = 0.07$ . 实线和虚线箭头分别指示由核磁共振测得的结构相变温度  $T_s$  和反铁磁相变温度  $T_N$

Fig. 19. Enlarged part of the in-plane electrical resistivity  $\rho_{ab}$  (right vertical axis) and its derivative (left vertical axis) for (a)  $x = 0.05$  and (b)  $x = 0.07$ . The solid and dashed arrows indicate the structural transition temperature  $T_s$  and the antiferromagnetic transition temperature  $T_N$  determined by NMR, respectively.

铁基超导体的超导机理尚未确定。有理论认为其超导由磁涨落 [41–43] 引起。也有理论认为超导由结构/轨道涨落 [44] 引起。 $\text{BaFe}_{2-x}\text{Ni}_x\text{As}_2$  中,  $T_c$  的最高值出现在  $x_{c1}$  处, 似乎暗示反铁磁量子临界涨落对  $\text{BaFe}_{2-x}\text{Ni}_x\text{As}_2$  的超导起了更大的作用。值得指出的是, 在  $\text{BaFe}_{2-x}\text{Ni}_x\text{As}_2$  中发现的新的量子临界点以及与之相伴的量子临界现象到目前为止探索较少, 需要进一步的研究。

#### 4 结束语

本文介绍了利用核磁共振法对几种铁基超导体中的量子临界现象研究。在空穴型和电子型掺杂铁基超导体中均得到了反铁磁与超导微观共存的证据, 确认了在相图中超导与反铁磁交界区域里, 两序微观共存。配合输运测量观测到反铁磁和结构相变两个量子临界点, 一个是磁量子临界点, 另一个是由列量子临界点。目前人们对后者的认识尚浅, 与其相关的临界现象以及和超导的关系需深入研究。

#### 参考文献

- [1] Cooper R A, Wang Y, Vignolle B, Lipscombe O J, Hayden S M, Tanabe Y, Adachi T, Koike Y, Nohara M, Takagi H, Proust C, Hussey N E 2009 *Science* **323** 603
- [2] Mathur N D, Grosche F M, Julian S R, Walker I R, Freray D M, Haselwimmer R K W, Lonzarich G G 1998 *Nature* **394** 39
- [3] Gegenwart P, Si Q, Steglich F 2008 *Nat. Phys.* **4** 186
- [4] Coleman P, Schofield A J 2005 *Nature* **433** 226
- [5] Sachdev S, Keimer B 2011 *Phys. Today* **64** 29
- [6] Kamihara Y, Watanabe T, Hirano M, Hosono H 2008 *J. Am. Chem. Soc.* **130** 3296
- [7] Ren Z A, Lu W, Yang J, Yi W, Shen X L, Li Z C, Che G C, Dong X L, Sun L L, Zhou F, Zhao Z X 2008 *Chin. Phys. Lett.* **25** 2215
- [8] Fernandes R, Schmalian J 2010 *Phys. Rev. B* **82** 014521
- [9] Hertz J A 1976 *Phys. Rev. B* **14** 1165
- [10] Chakravarty S, Halperin B I, Nelson D R 1989 *Phys. Rev. B* **39** 2344
- [11] Moriya T 1991 *J. Mag. Mag. Mat.* **100** 261
- [12] Xu C, Müller M, Sachdev S 2008 *Phys. Rev. B* **78** 020501
- [13] Chubukov A V, Hirschfeld P J 2015 *Phys. Today* **68** 46
- [14] Rotter M, Pangerl M, Tegel M, Johrendt D 2008 *Angew. Chem. Int. Ed.* **47** 7949
- [15] 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, Cao G H, Xu Z A 2009 *New. J. Phys.* **11** 025008

- [16] Julien M H, Mayaffre H, Horvatic M, Berthier C, Zhang X D, Wu W, Chen G F, Wang N L, Luo J L 2009 *Europhys. Lett.* **87** 37001
- [17] Park J T, Inosov D S, Niedermayer C, Sun G L, Haug D, Christensen N B, Dinnebier R, Boris A V, Drew A J, Schulz L, Shapoval T, Wolff U, Neu V, Yang X, Lin C T, Keimer B, Hinkov V 2009 *Phys. Rev. Lett.* **102** 117006
- [18] Baek S H, Lee H, Brown S E, Curro N J, Bauer E D, Ronning F, Park T, Thompson J D 2009 *Phys. Rev. Lett.* **102** 227601
- [19] Urbano R R, Green E L, Moulton W G, Reyes A P, Kuhns P L, Bittar E M, Adriano C, Garitezi T M, Bu-faiçal L, Pagliuso P G 2010 *Phys. Rev. Lett.* **105** 107001
- [20] Wiesenmayer E, Luetkens H, Pascua G, Khasanov R, Amato A, Potts H, Banusch B, Klauss H H, Johrendt D 2011 *Phys. Rev. Lett.* **107** 237001
- [21] Avci S, Chmaissem O, Goremychkin E A, Rosenkranz S, Castellan J P, Chung D Y, Todorov I S, Schlueter J A, Claus H, Kanatzidis M G, Daoud-Aladine A, Khalyavin D, Osborn R 2011 *Phys. Rev. B* **83** 172503
- [22] Laplace Y, Bobroff J, Rullier-Albenque F, Colson D, Forget A 2009 *Phys. Rev. B* **80** 140501
- [23] Sanna S, De Renzi R, Lamura G, Ferdeghini C, Palenzona A, Putti M, Tropeano M, Shiroka T 2009 *Phys. Rev. B* **80** 052503
- [24] Sun G L, Sun D L, Konuma M, Popovich P, Boris A, Peng J B, Choi K Y, Lemmens P, Lin C T 2011 *J. Supercond. Nov. Magn.* **24** 1773
- [25] Li Z, Zhou R, Liu Y, Sun D L, Yang J, Lin C T, Zheng G Q 2012 *Phys. Rev. B* **86** 180501
- [26] Shen B, Yang H, Wang Z S, Han F, Zeng B, Shan L, Ren C, Wen H H 2011 *Phys. Rev. B* **84** 184512
- [27] Li Z, Sun D L, Lin C T, Su Y H, Hu J P, Zheng G Q 2011 *Phys. Rev. B* **83** 140506
- [28] 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
- [29] Kitagawa K, Katayama N, Ohgushi K, Yoshida M, Taki-gawa M 2008 *J. Phys. Soc. Jpn.* **77** 114709
- [30] Kawasaki S, Mito T, Kawasaki Y, Zheng G Q, Kitaoka Y, Aoki D, Haga Y, Onuki Y 2003 *Phys. Rev. Lett.* **91** 137001
- [31] Ma F J, Lu Z Y, Xiang T 2010 *Front. Phys. China* **5** 150
- [32] Zhou R, Li Z, Yang J, Sun D L, Lin C T, Zheng G Q 2013 *Nat. Commun.* **4** 2265
- [33] Fuseya Y, Kohno H, Miyake K 2003 *J. Phys. Soc. Jpn.* **72** 2914
- [34] Maiti S, Fernandes R M, Chubukov A V 2012 *Phys. Rev. B* **85** 144527
- [35] Ning F L, Ahilan K, Imai T, Sefat A S, McGuire M A, Sales B C, Mandrus D, Cheng P, Shen B, Wen H H 2010 *Phys. Rev. Lett.* **104** 037001
- [36] Dai Y M, Xu B, Shen B, Xiao H, Wen H H, Qiu X G, Homes C C, Lobo R P S M 2013 *Phys. Rev. Lett.* **111** 117001
- [37] Nakai Y, Iye T, Kitagawa S, Ishida K, Ikeda H, Kasahara S, Shishido H, Shibauchi T, Matsuda Y, Terashima T 2010 *Phys. Rev. Lett.* **105** 107003
- [38] Hashimoto K, Cho K, Shibauchi T, Kasahara S, Mizukami Y, Katsumata R, Tsuruhara Y, Terashima T, Ikeda H, Tanatar M A, Kitano H, Salovich N, Giannetta R W, Walmsley P, Carrington A, Prozorov R, Matsuda Y 2012 *Science* **336** 1554
- [39] Luetkens H, Klauss H H, Kraken M, Litterst F J, Dellmann T, Klingeler R, Hess C, Khasanov R, Amato A, Baines C, Kosmala M, Schumann O J, Braden M, Hamann-Borrero J, Leps N, Kondrat A, Behr G, Werner J, Buchner B 2009 *Nat. Mater.* **8** 305
- [40] Oka T, Li Z, Kawasaki S, Chen G F, Wang N L, Zheng G Q 2012 *Phys. Rev. Lett.* **108** 047001
- [41] Mazin I I, Singh D J, Johannes M D, Du M H 2008 *Phys. Rev. Lett.* **101** 057003
- [42] Kuroki K, Onari S, Arita R, Usui H, Tanaka Y, Kontani H, Aoki H 2008 *Phys. Rev. Lett.* **101** 087004
- [43] Graser S, Maier T A, Hirschfeld P J, Scalapino D J 2009 *New. J. Phys.* **11** 025016
- [44] Kontani H, Onari S 2010 *Phys. Rev. Lett.* **104** 157001

SPECIAL ISSUE—Progress in research of superconductivity and correlated systems

# Quantum criticalities in carrier-doped iron-based superconductors\*

Li Zheng Zhou Rui Zheng Guo-Qing<sup>†</sup>

(Beijing National Laboratory for Condensed Matter Physics, Institute of Physics, Chinese Academy of Sciences,  
Beijing 100190, China)

(Received 6 September 2015; revised manuscript received 14 October 2015)

## Abstract

In the past several decades, quantum phase transition and the associated fluctuations have emerged as a major challenge to our understanding of condensed matter. Such transition is tuned by an external parameter such as pressure, chemical doping or magnetic field. The transition point, called quantum critical point (QCP), is only present at absolute zero temperature ( $T$ ), but its influence (quantum criticality) is spread to nonzero temperature region. Quite often, new stable orders of matter, such as superconductivity, emerge around the QCP, whose relationship to the quantum fluctuations is one of the most important issues.

Iron-pnictide superconductors are the second class of high-temperature-superconductor family whose phase diagram is very similar to the first class, the copper-oxides. Superconductivity emerges in the vicinity of exotic orders, such as antiferromagnetic, structural or nematic order. Therefore, iron-pnictides provide us a very good opportunity to study quantum criticality. Here we review nuclear magnetic resonance (NMR) study on the coexistence of states and quantum critical phenomena in both hole-doped system  $\text{Ba}_{1-x}\text{K}_x\text{Fe}_2\text{As}_2$  as well as electron-doped systems  $\text{BaFe}_{2-x}\text{Ni}_x\text{As}_2$  and  $\text{LaFeAsO}_{1-x}\text{F}_x$ . Firstly, we found that the  $^{75}\text{As}$  NMR spectra split or are broadened for  $H//c$ -axis, and shift to a higher frequency for  $H//ab$ -plane below a certain temperature in the underdoped region of both hole-doped  $\text{Ba}_{1-x}\text{K}_x\text{Fe}_2\text{As}_2$  and electron-doped  $\text{BaFe}_{2-x}\text{Ni}_x\text{As}_2$ , which indicate that an internal magnetic field develops along the  $c$ -axis due to an antiferromagnetic order. Upon further cooling, the spin-lattice relaxation rate  $1/T_1$  measured at the shifted peak shows a distinct decrease below the superconducting critical temperature  $T_c$ . These results show unambiguously that the antiferromagnetic order and superconductivity coexist microscopically, which is the essential condition for a magnetic QCP. Moreover, the much weaker  $T$ -dependence of  $1/T_1$  in the superconducting state compared with the optimal doping sample suggests that the coexisting region is an unusual state and deserves further investigation. Secondly, we conducted transport measurements in electron-doped  $\text{BaFe}_{2-x}\text{Ni}_x\text{As}_2$  system, and found a  $T$ -linear resistivity at two critical points. One is at the optimal doping  $x_{c1} = 0.10$ , while the other is in the overdoped region  $x_{c2} = 0.14$ . We found that  $1/T_1$  is nearly  $T$ -independent above  $T_c$  at  $x_{c1}$  where  $T_N = 0$ , which indicates that  $x_{c1}$  is a magnetic QCP and the observed  $T$ -linear resistivity is due to the quantum fluctuation. We find that  $1/T_1$  close to the optimal doping in both  $\text{Ba}_{1-x}\text{K}_x\text{Fe}_2\text{As}_2$  and  $\text{LaFeAsO}_{1-x}\text{F}_x$  also shows a similar behavior as in  $\text{BaFe}_{2-x}\text{Ni}_x\text{As}_2$ . The results suggest that superconductivity in these compounds is strongly tied to the quantum antiferromagnetic spin fluctuation. We further studied the structural

\* Project supported by the CAS Strategic Priority Research Program, China (Grant No. XDB07020200), the State Key Development Program for Basic Research of China (Grant Nos. 2012CB821402, 2015CB921304), and the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 11104336).

† Corresponding author. E-mail: gqzheng@iphy.ac.cn

transition in  $\text{BaFe}_{2-x}\text{Ni}_x\text{As}_2$  by NMR. Since the  $a$ -axis and  $b$ -axis are not identical below the nematic structural transition temperature  $T_s$ , the electric field-gradient becomes asymmetric. Therefore the NMR satellite peaks associated with nuclear spin  $I = 3/2$  of  $^{75}\text{As}$  split for a twinned single crystal, when the external magnetic field is applied along  $a$ - or  $b$ -axis. We were able to track the nematic structural transition up to  $x = 0.12$ . The  $T_s$  extrapolates to zero at  $x = 0.14$  which suggests that  $x_{c2}$  is a QCP associated with a nematic structural phase transition and the  $T$ -linear resistivity at  $x_{c2}$  is therefore due to the QCP. No existing theories can explain such behavior of the resistivity and we call for theoretical investigations in this regard.

**Keywords:** nuclear magnetic resonance, iron-based superconductor, spin fluctuations, quantum critical phenomena

**PACS:** 74.25.nj, 74.70.Xa, 74.40.Kb, 74.25.Op

**DOI:** [10.7498/aps.64.217404](https://doi.org/10.7498/aps.64.217404)