

铁基超导体 $\text{Fe}_{1+y}\text{Te}_{1-x}\text{Se}_x$ 中磁性的中子散射研究

李世超 甘远 王靖琿 冉柯静 温锦生

Magnetic neutron scattering studies on the Fe-based superconductor system $\text{Fe}_{1+y}\text{Te}_{1-x}\text{Se}_x$

Li Shi-Chao Gan Yuan Wang Jing-Hui Ran Ke-Jing Wen Jin-Sheng

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 64, 097503 (2015) DOI: 10.7498/aps.64.097503

在线阅读 View online: <http://dx.doi.org/10.7498/aps.64.097503>

当期内容 View table of contents: <http://wulixb.iphy.ac.cn/CN/Y2015/V64/I9>

您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

水泥老化过程中水动态的准弹性中子散射 (QENS) 谱分析

[Spectral analysis of water dynamics in cement paste by quasi-elastic neutron scattering](#)

物理学报.2015, 64(5): 056101 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.64.056101>

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>

$\text{K}_{0.8}\text{Fe}_2\text{Se}_2$ 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>

一种等效于反铁磁海森伯混合自旋链的铁磁-反铁磁交替自旋链

[A kind of ferromagnetic-antiferromagnetic alternating spin chain equivalent to the mixed spin Heisenberg chain](#)

物理学报.2012, 61(6): 067502 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.61.067502>

专题: 庆祝南京大学物理学科成立100周年

铁基超导体 $\text{Fe}_{1+y}\text{Te}_{1-x}\text{Se}_x$ 中磁性的 中子散射研究*

李世超 甘远 王靖琿 冉柯静 温锦生†

(南京大学物理学院, 固体微结构物理国家重点实验室, 超导物理和材料研究中心, 人工微结构科学与技术协同创新中心, 南京, 210093)

(2015年1月28日收到; 2015年2月28日收到修改稿)

本文对本研究组主要的研究领域——利用中子散射研究铁基超导体 $\text{Fe}_{1+y}\text{Te}_{1-x}\text{Se}_x$ 中磁性与超导的相互作用进行简要综述. $\text{Fe}_{1+y}\text{Te}_{1-x}\text{Se}_x$ 具有和其他铁基、铜基超导体相似的相图——母相 Fe_{1+y}Te 是反铁磁体, 随着 Se 掺杂的增加, 母相的反铁磁序受到抑制, 随后在 $x \sim 30\%$ 处体超导出现, 在 $x \sim 50\%$ 处达到最佳掺杂, 此时超导转变温度 $T_c \sim 15$ K, 达到整个体系在常压下的 T_c 最大值. 它们的相图又存在着差别: 在相图末端, 即当 Se 掺杂达 100% 时, Fe_{1+y}Se 仍然超导, $T_c \sim 8$ K. 该体系母相磁有序的面内波矢大致为 $(0.5, 0)$ (采用每个原胞含 2 个铁原子的四方结构), 随着 Se 含量的增加, 在超导逐渐发展的同时, 磁激发谱的谱重被逐渐转移到波矢为 $(0.5, 0.5)$ 处. $(0.5, 0.5)$ 处在温度低于 T_c 时出现中子-自旋共振峰. 施加外磁场后, 超导受到抑制, 该共振峰也被压制. 从这些实验结果我们得到以下的结论: 在这个体系中磁性和超导紧密耦合在一起—— $(0.5, 0)$ 处的静态磁有序与超导互相竞争, $(0.5, 0.5)$ 附近的自旋激发则可能对超导电性的形成具有重要的促进作用. 本文还将简要讨论磁性的来源和 $3d$ 过渡金属的替代效应.

关键词: 铁基超导体, 中子散射, 磁有序, 自旋激发

PACS: 75.30.Fv, 61.05.fg, 74.70.Xa, 75.25.-j

DOI: 10.7498/aps.64.097503

1 绪论

1.1 简述

由 Bardeen、Cooper 以及 Schrieffer 等人发展起来的多体理论——BCS 理论 (以三人姓氏首字母命名) 成功地解释了在金属 (合金) 中出现的常规低温超导电性^[1]. 其核心概念是电子在电子-声子相互作用下形成的电子库珀对在系统温度降到超导转变温度 T_c 时发生玻色-爱因斯坦凝聚 (BEC)^[1]. 1986 年, 铜氧化物高温超导体的发现对这一被认为是非常成功的超导理论提出了挑战^[2-4], 但是在实际应用方面, 它们的超导温度可以高于液氮的沸点, 意味着可以用廉价的液氮代替昂贵的液氦对它

们进行冷却, 使人们看到了超导体能够被大规模应用的曙光^[5,6]. 在铜氧化物超导体中, 电声子耦合强度难以支持它们那么高的超导转变温度^[5,6]. 因此, 高温超导一出现, 科学家们就开始寻求可以替代 BCS 理论的高温超导机理. 在高温超导材料中, 超导电性是通过用载流子对反铁磁的莫特绝缘体进行掺杂得到的^[5-9]. 莫特绝缘体是指根据能带理论预测为金属但实际上由于其巨大的电子关联效应使得巡游电子被局域而形成绝缘体的一种材料^[10,11]. 大量的实验结果表明, 高温超导相和反铁磁相有着紧密的联系^[5-9]. 因此, 研究人员希望通过研究磁性与超导的相互作用, 解决这一困扰凝聚态物理学界多年的难题. 这个问题的解决, 对于设计、合成性能更佳, 更符合实际应用的超导体具有

* 国家自然科学基金 (批准号: 11374143)、教育部新世纪优秀人才支持计划 (批准号: 13-0282) 和中央高校基本科研业务费专项资金资助的课题.

† 通信作者. E-mail: jwen@nju.edu.cn

重要的指导意义。

2008年, 超导研究进入了新的纪元. 日本科学家率先在一类含有铁的化合物中发现了超导现象^[12,13], 这类材料后来被称为铁基超导体. 最先引起人们兴趣的工作是由Hosono小组报道的, 在 $\text{LaFeAsO}_{1-x}\text{F}_x$ (基于母体材料各元素化学组分比例以1111标记) 中存在 $T_c = 26\text{ K}$ 的超导电性^[13]. 这一小组早些时候还报道了 $\text{LaFePO}_{1-x}\text{F}_x$ 中 $T_c \sim 5\text{ K}$ 的超导^[12]. 这一发现在超导研究领域激起了极大的热情. 在随后非常短的时间内, 大量新型铁基超导体井喷般地被报道出来. 迄今, 包括1111系统在内, 已经发现了五类主

要的铁基超导体, 各类的代表分别是 BaFe_2As_2 (122)^[14-17]、 LiFeAs (111)^[18,24]、 $\text{Fe}_{1+y}\text{Te}_{1-x}\text{Se}_x$ (11)^[25-29]、 $\text{Sr}_2\text{VO}_3\text{FeAs}$ (21311)^[30,31] 以及 $\text{K}_x\text{Fe}_{2-y}\text{Se}_2$ ^[32-36]. 以上几类超导体的晶体结构如图1所示($\text{K}_x\text{Fe}_{2-y}\text{Se}_2$ 与122结构相同)^[12,22,37-40]. 在室温下它们都是四方相的层状结构. 目前块状材料 T_c 的最高纪录是 $\text{Gd}_{1-x}\text{Th}_x\text{FeAsO}$ 化合物的56 K^[41,42], 仅次于铜氧化物超导体. 因此铁基超导体被广泛认可为铜基超导体外的又一类高温超导体. 比较研究铜基和铁基超导体性质的异同, 对高温超导机理的发展将起到重要作用.

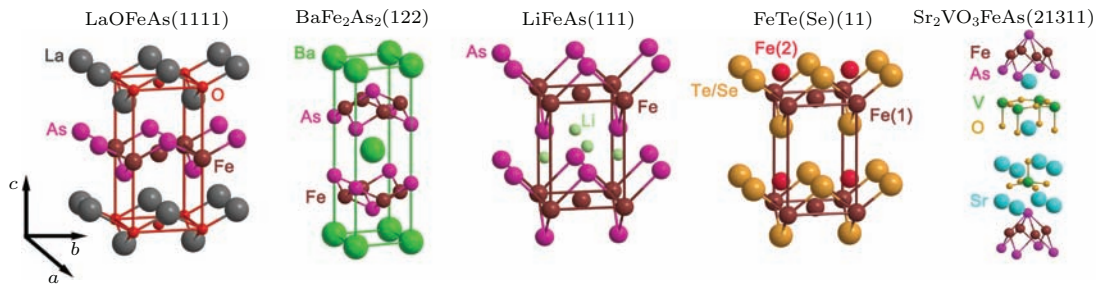


图1 1111、122、111、11 以及 21311 等 5 类主要铁基超导体晶体结构示意图

Fig. 1. Schematic crystal structures for the 1111, 122, 111, 11, and 21311 type Fe-based superconductors.

铁基超导体具有独特的母体是它们区别于铜氧化物超导体一个显著特征. 无掺杂的铜氧化物是莫特绝缘体^[5,6], 而铁基化合物的母体则具有金属性^[43]. 这个差异自然而然地导致在考虑二者性质时出发点有所不同: 对于铁基超导体, 研究人员更倾向于用弱耦合理论进行处理^[44,45]. 另外, 不同于铜氧化物能带中起主要作用的仅有铜的一个3d轨道, 铁基化合物中铁原子的4—5个3d能带同时穿过费米能级^[45], 这在一定程度上使得铁基超导体的物理本质更加复杂难懂^[46]. 抛开这些差异, 铜基和铁基这两类高温超导体有着惊人相似的相图^[47]——除了少数几个例外的情况, 在铁基超导体中母体化合物都存在着长程反铁磁序, 而随着掺杂浓度的提高, 反铁磁序受到抑制, 超导电性则在掺杂达到一定程度后开始出现, 并逐渐优化, 再到消失^[38-40,48-66]. 这样的相似性使得不少物理学家认为它们的超导配对机理可能相同, 即磁激发代替声子参与电子配对过程^[43-45,67-70]. 然而, 由于Fe的多个d轨道都靠近费米能级, 电子的轨道激发也被认为会对配对机理有所贡献^[46,71,72]. 尽管目前关于高温超导机理还未能达成共识, 但

是, 运用中子散射研究磁性与超导的关联已经取得了丰硕的成果, 已经并将继续大力地推动业内对高温超导的认知进程.

由于国内外学者针对铁基超导体做了大量的工作, 这一领域的文章已不胜枚举. 在综述性文章方面, 不仅有大量全面的综述, 也有不少专题类的文章^[47,65,73-85]. 在本文中, 我们将专注于 $\text{Fe}_{1+y}\text{Te}_{1-x}\text{Se}_x$ (11体系), 并以磁性的中子散射研究结果作为重点, 作一概述.

1.2 $\text{Fe}_{1+y}\text{Te}_{1-x}\text{Se}_x$ 体系

$\text{Fe}_{1+y}\text{Te}_{1-x}\text{Se}_x$ 体系的超导最先于 Fe_{1+y}Se 中被发现; 该材料在 $T \approx 8\text{ K}$ 时表现出零电阻^[25]. 常压下, 当硒浓度在 $x = 0.5$ 左右时, 材料的 T_c 达到最高, 约为15 K^[26,27,29]. 在加压情况下, Fe_{1+y}Se 的 T_c 能够达到37 K^[86-88]. 扫描隧道显微镜 (STM) 对于单层铁硒薄膜的研究表明, 其 T_c 可能远高于37 K^[89]; 在该工作中^[89], 虽然从输运测量结果来看, 零电阻仅在30 K以下时才出现, 但材料具有一个约20 meV的能隙——如果该能隙为超导能隙, 则意味着该材料的 T_c 可能超过液氮的沸点

77 K^[89]. 之后的角分辨光电子能谱 (ARPES) 测量显示, 在单层铁硒薄膜中有一个 20 meV 的能隙在温度升到 65 K 左右时才闭合^[90-92]. 最近的运输测量得到的 T_c 较最初的运输工作高了不少^[89,93,94]. 值得一提的是, 上海交通大学的贾金锋研究组通过在薄膜上原位加载四根探针进行运输测量, 在超过 100 K 的温度观测到了可能跟超导相关的电输运性质^[93]. 这个结果表明铁基超导体 56 K 的转变温度纪录或许已经被打破了^[41,42,95].

除了可能存在的高 T_c , 11 系统中还有其他几个特性值得关注. 例如: 1) 其母体化合物的磁性起源可能和其他铁基化合物不同. 这一点我们会在第 2 节进行讨论; 2) 如图 1 所示, 其晶体结构是最简单的; 3) 如其化学式所表明的, 11 系统不含砷, 毒性低; 4) 这一体系能够生长出大尺寸的单晶 (在 $x \leq 0.7$ 的范围内). 这对于中子散射实验尤其重要. 由于中子源的强度有限, 而中子与物质作用的散射截面小, 所以导致中子散射信号较弱. 因此, 在给定的实验机时内, 为了得到可靠的数据, 需要通过增加样品的量进行弥补, 样品尺寸最好为 $\gtrsim 1 \text{ cm}^3$.

1.3 中子散射实验

在进一步讨论之前, 我们首先介绍表征材料磁性关联最有力的工具——中子散射. 中子散射与 X 射线散射类似^[96], 二者都能用于探测晶体结构和晶格动力学 (即声子). 但由于中子带有 1/2 的自旋, 它能够与孤对电子的自旋发生相互作用, 因此可以用来探索材料的磁性质. 同时中子呈电中性, 与物质的作用为短程的弱相互作用, 因此中子的入射深度很大, 这为利用中子散射探索块材的体性质带来极大的便利. 在这里我们主要对磁散射感兴趣, 其散射截面为^[97-99]

$$\frac{d^2\sigma}{d\Omega dE_f} = \frac{N}{h} \cdot \frac{k_f}{k_i} \cdot p^2 e^{-2W} S(\mathbf{Q}, E), \quad (1)$$

其中 N 是单胞总数, k_i 和 k_f 是中子的入射和出射波矢, $p = \frac{\gamma r_0}{2} g f(\mathbf{Q})$, $\frac{\gamma r_0}{2} = 0.2695 \times 10^{-12} \text{ cm}$, g 是朗德因子, $f(\mathbf{Q})$ 是与波矢 \mathbf{Q} 有关的磁形状因子, e^{-2W} 是德拜瓦勒因子, $S(\mathbf{Q}, E)$ 是与 \mathbf{Q} 和能量 E 有关的自旋动力学关联函数, 是通过实验所要获得的最终的量. $S(\mathbf{Q}, E)$ 与自旋磁化率虚部 $\chi''(\mathbf{Q}, E)$ 有关, 根据涨落耗散定理有^[100]

$$S(\mathbf{Q}, E) = \frac{\hbar}{\pi g^2 \mu_B^2} \cdot \frac{1}{1 - e^{-E/k_B T}} \cdot \chi''(\mathbf{Q}, E), \quad (2)$$

其中 μ_B 是玻尔磁子, $(1 - e^{-E/k_B T})^{-1}$ 为玻色因子. 在自旋为 S 的系统中, 在一个布里渊区内, $S(\mathbf{Q}, E)$ 还满足一个简单的求和关系, 即

$$\int_{\text{BZ}} S(\mathbf{Q}, E) d^3\mathbf{Q} dE = S(S+1) \quad [97,98]. \quad (3)$$

本文讨论的中子散射的结果主要来源于在三轴谱仪 (triple-axis spectrometer, TAS) 和时间飞行谱仪 (time-of-flight spectrometer, TOFS) 上进行的实验. 这两类谱仪都可以用来进行弹性与非弹性散射实验. TAS 的三个轴分别对应于单色仪、样品台和分析仪. 在 TAS 上进行实验时, 一般采取固定出射能量 E_f , 改变入射能量 E_i 的做法. 中子的能量由波长通过 $E = 81.79/\lambda^2$ 这一式子确定. 波长通过单晶的晶面衍射根据布拉格定律, $2d\sin\theta = \lambda$ 确定. 其中 d 是反射平面的面间距. 入射波矢与反射平面的夹角为 θ . 单色仪和分析仪通常用热解石墨的 (002) 晶面来分析和分析中子能量. 利用 TAS 对 $S(\mathbf{Q}, E)$ 在某一特定的 \mathbf{Q} - E 点处进行精确测定是十分方便的, 其动量和能量分辨率也非常理想. 它们适合用来测量信号局域在某一区域的体系; 其缺点是每次仪器只能采集动量-能量空间中一个点的信息. 如果需要采集的信息分布在比较大范围的 \mathbf{Q} 和 E , 用 TAS 将会非常耗时, 并且 TAS 的能量范围也往往比较局限. TOFS 拥有一系列对位置敏感的探测器, 它们能够同时对一个区域而不仅仅是某一个点进行采样. 对于 TOFS, 中子的能量则是通过测量中子的飞行时间而得到的. 相较于 TAS, TOFS 仪器数量更少, 选择余地较小, 而且对某一类时间飞行谱仪, 其分辨率通常也更粗糙. 由于它们各自都有优缺点, 在实验中通常是根据感兴趣的信息的特征, 互为补充地加以选择使用.

处理中子散射的实验数据时, 波矢 \mathbf{Q} , (Q_x, Q_y, Q_z) 表示为 (HKL) ; 以倒格矢 $(a^*, b^*, c^*) = (2\pi/a, 2\pi/b, 2\pi/c)$, 即 (rlu) 为单位. 本文我们采用每个晶胞含有两个铁原子的四方晶胞坐标系统, 如图 3 所示, 该晶格常数 $a \approx 3.8 \text{ \AA}$.

2 静态磁有序

我们将结合如图 2 所示的相图进行讨论. 图 2 是对通过 Bridgman 方法^[77] 合成的 $\text{Fe}_{1+y}\text{Te}_{1-x}\text{Se}_x$ 单晶进行电阻、磁化率以及中子散射测量得到的相图. 其他数个研究组^[61-66] 也

得到了和图 2 类似的相图. 初看上去, 该相图和铜氧化物以及铁砷超导体的相图大致类似. 但是又与它们有三个重要的差别: 1) 与大多数其他非等价掺杂, 即用非等价元素进行取代的超导体不同, $\text{Fe}_{1+y}\text{Te}_{1-x}\text{Se}_x$ 中的掺杂是由同价的 Se 取代 Te; 2) 其他超导体在载流子掺杂到一定程度后 (未到完全掺杂前) 超导电性消失, 而对于该体系, 即使掺杂到 $x = 1$ 依然存在超导电性 [81]; 3) 该体系的性质不仅可以通过调节 Se, 而且还能通过控制 Fe 的量来进行调控. 因此, 在该体系的化学式中出现第二个变量 y . 实际上, 在 Se 掺杂较低的样品中, 需要一定量的多余的 Fe 来稳定晶体结构 [77].

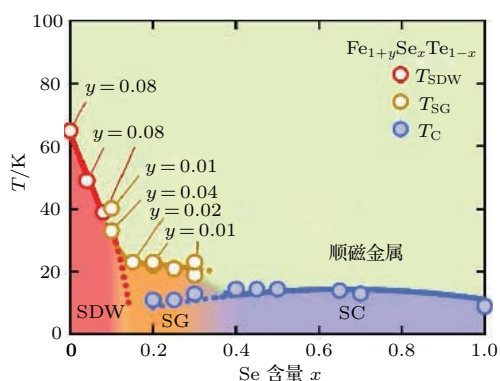


图 2 从单晶的电阻率、磁化率和中子散射等测量手段得到的 $\text{Fe}_{1+y}\text{Te}_{1-x}\text{Se}_x$ 的相图 (SDW、SG 和 SC 分别代表自旋密度波、自旋玻璃和超导相 [64]. 除了图上特别标明的情况, 相图中 $y = 0$)

Fig. 2. Phase diagram of $\text{Fe}_{1+y}\text{Te}_{1-x}\text{Se}_x$, constructed from resistivity, magnetization and neutron scattering data on single crystals. The nominal Fe content is $y = 0$, unless specified. SDW, SG, and SC stand for antiferromagnetic, spin-glass and superconducting phase respectively. Reprinted from Ref. [64].

位于相图 (图 2) 最左端的 Fe_{1+y}Te 通常是不超导的; 在 65 K 时同时发生磁和结构相变 [62, 101–103]. 这些性质跟 1111 和 122 系统的不掺杂材料类似 [39, 48–61, 63, 65], 因此 Fe_{1+y}Te (而不是相图另一端的 Fe_{1+y}Se) 通常被认为是 11 系统的母相 [29, 101, 102, 104, 105]. 根据最初的能带计算, Fe_{1+y}Te 的费米面应该跟铁砷体系类似 [106]; 这个预测后来也被 ARPES 实验所证实 [107, 108]. 根据费米面嵌套理论 [106], 人们预计在 Fe_{1+y}Te 中能够观察到共线的自旋密度波 (SDW) 反铁磁序, 其 a - b 面内磁结构如图 3 (b) 所示, 对应的面内波矢为 $(0.5, 0.5)$. 但实际情况是, Fruchart 等人 [109] 几十年前已经在 $\text{Fe}_{1.125}\text{Te}$ 中发现该材料的反铁磁序对应的面内波矢为 $(0.5, 0)$. Bao 等人 [101] 在 $\text{Fe}_{1.075}\text{Te}$ 中, 以及

Li 等人 [102] 在 $\text{Fe}_{1.068}\text{Te}$ 中也观测到了跟 Fruchart 等人所发现的类似的结果. 这些磁结构如图 3 (a) 所示, 为双共线的自旋结构. 但是, ARPES 实验没有观测到沿着 $[0.5, 0]$ 方向有任何 SDW 失稳的迹象 [107, 110]. 很显然, 简单的费米面嵌套理论很难解释这些实验结果.

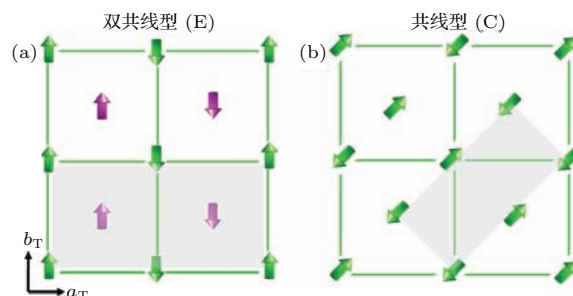


图 3 (a) 11 体系四方坐标系下的双共线型 (E 型) 面内自旋结构示意图; (b) 铁磷族化合物共线型 (C 型) 磁结构. 阴影部分表示磁结构原胞

Fig. 3. (a) Schematic for the bicollinear (E-type) in-plane spin structure in tetragonal notation for the 11 compound; (b) collinear (C-type) magnetic structure for iron pnictides. Shadow represents the magnetic unit cell.

Fe_{1+y}Te 中的磁有序是长程的. 在 $y = 0.05$ 时其磁矩 $\sim 2.5 \mu_B/\text{Fe}$ [101, 102, 109]. 该磁矩远大于铁砷反铁磁体的磁矩 (不超过 $1 \mu_B/\text{Fe}$) [48, 52], 但是比通过顺磁相磁化率估算出的有效磁矩小 [111]. 磁矩方向大致沿着 b 轴, 如图 3 (a) 所示 [101–103]. 如此大的磁矩以及磁有序波矢上费米面嵌套的缺失, 似乎都表明这个体系的磁性同其他巡游电子占主导地位的铁砷超导体不同. 第一性原理计算表明, 如果考虑局域磁矩以及洪特耦合的作用, 可以得到跟实验观测吻合得更好的计算结果 [51, 112–117].

间隙铁原子的量对磁有序会产生影响 [101, 118–120]. 过量的 Fe 原子处在间隙中心, 位于四个 Fe 所构成的平面之上 (或者之下) [103, 121]. 间隙 Fe 原子与最近邻的 Fe 原子的磁性相互作用导致了局域的铁磁关联 [111, 122] 以及电荷载流子的弱局域化 [123]. Rodriguez 等人建立了 Fe_{1+y}Te 的磁-晶体结构相图 [124]. 他们发现, 磁有序会随着间隙 Fe 的量 (y) 的增加而变化, 并存在一个临界值 y_c , 在这一点磁序发生由双共线公度到螺旋非公度有序的转变 [101, 102, 118, 124, 125]. 磁有序的改变与低温下结构对称性由单斜到正交的转变相关 [124, 126]. 最近的理论计算解释了磁序随过量铁的演变过程: 过量铁改变了局域磁矩之间的 Ruderman-Kittel-Kasuya-Yosida (RKKY) 相互作用, 该相互作用依

赖于巡游电子和局域磁矩之间的洪特耦合, 耦合大小随 y 而改变^[127]. 值得一提的是, 最近有报道利用自旋极化的STM观测 Fe_{1+y}Te 中磁有序在实空间中的图像, 和中子衍射测量得到的结果基本一致^[128].

随着Se掺杂的增加, 静态磁有序被抑制, 具体表现为: 有序温度降低(从65 K降到 $x = 0.1$ 时的 $\lesssim 30$ K)^[64]; 有序磁矩变小(从2.1到 $0.27 \mu_{\text{B}}/\text{Fe}$)^[62]; 关联长度变短(在母相中得到的磁性峰宽度基本为仪器的分辨率, 关联长度很大. 当掺杂 $x = 0.25$ 时, 磁有序变成关联长度为 $\sim 4 \text{ \AA}$ 的短程序^[101,129]). 在Se含量超过0.15的区域, 自旋玻璃相和超导相共存^[61,62,64,103,129]. 有趣的是, 实验上仅在公度反铁磁波矢 $(0.5, 0)$ 一侧观察到一个磁性峰, 即在 $(0.5 - \delta, 0)$ 处, 而不是 $(0.5 \pm \delta, 0)$ 处 (δ 为非公度量); 这可能是近邻自旋之间铁磁、反铁磁关联所占比重失衡的结果^[129]. 进一步提高Se的含量(在 $y \sim 0$ 的情况下), 掺杂在 $x \approx 0.5$ 时达到最佳水平(超导临界温度最高), 此时没有静态磁有序^[61,62,130].

过量的铁原子也会影响Se掺杂样品中的磁性关联. 我们^[131]对两对、四个样品进行了测量: $\text{FeTe}_{0.7}\text{Se}_{0.3}$ 和 $\text{Fe}_{1.05}\text{Te}_{0.7}\text{Se}_{0.3}$; $\text{FeTe}_{0.5}\text{Se}_{0.5}$ 和 $\text{Fe}_{1.05}\text{Te}_{0.55}\text{Se}_{0.45}$. 其中, $y = 0$ 的两个样品都超导, 有着相同的 $T_c \sim 15 \text{ K}$, 不过 $x = 0.3$ 的样品超导含量较低. 此外, $x = 0.3$ 的样品在 $(0.5, 0)$ 附近存在短程静态磁有序, 然而 $x = 0.5$ 的样品则没有表现出任何磁有序(不论是长程还是短程的). 在含过量Fe的 $y = 0.05$ 的两个样品中, 超导电性完全受到抑制, 从而导致 $(0.5, 0)$ 附近的磁散射谱重增强, 表现出短程静态有序. 这些结果清楚地表明, 过量的Fe稳定了反铁磁有序, 同时抑制了超导电性. Bendele等人给出了一幅同时以Se (x) 和过量Fe (y) 为变量的三维相图^[132]. 从该相图^[132]中的图3(b)]可以清楚地看出超导与磁有序随 x 和 y 的变化关系.

在 $\text{Fe}_{1+y}\text{Te}_{1-x}\text{Se}_x$ ($x \gtrsim 70\%$) 中, Se元素的大蒸汽压给单晶生长带来了很大的困难, 因此对于这些成份的中子散射结果十分有限^[77,81]. 在该体系位于相图最右端的一个成员 Fe_{1+y}Se 中, 尽管在温度下降到 $\sim 90 \text{ K}$ 时有使得对称性降低的结构转变^[133-135], 但是一些局部探测手段, 例如 Mössbauer谱^[133,136] 和 ^{77}Se 核磁共振(NMR)^[137] 都没有发现静态磁有序的存在. 在一个加压下 T_c 达到 37 K 的样品中, Mössbauer测量结果显示, 一直到

$\sim 30 \text{ GPa}$ 都没有出现静态磁有序^[86]. 与之相反, Bendele等人^[138]基于 μ 子自旋旋转(μSR)的测量结果, 发现了在 $P \gtrsim 0.8 \text{ GPa}$ 时出现短程磁有序. 然而, 压强对于这个样品超导电性的影响不太显著, 在 0.7 GPa 时达到的最高 T_c 仅为 13 K ^[138]. 两个不同小组对于 Fe_{1+y}Se 薄膜样品进行了ARPES测量, 他们的结果表明, 在一定的掺杂范围内磁有序可能存在于这些膜中^[90,91]. 第一性原理的计算表明, 该磁有序可能跟铁砷化合物中的一样, 是共线型的^[139], 也可能是独特的块状棋盘格子类型的^[140].

3 自旋动力学

3.1 自旋色散关系

早期, 有两个研究组独立地报道过在奈耳温度 T_N 下呈现反铁磁有序态的母相 Fe_{1+y}Te 中的自旋激发^[111,141]. 美国田纳西大学的戴鹏程研究组的结果显示, 他们的数据可以通过考虑各向异性的最近邻和次近邻耦合的海森堡模型的自旋波进行拟合^[141]. 美国布鲁克海文国家实验室的Zaliznyak等人发现, 以四个铁磁排列的最近邻铁原子的自旋作为一种新的作用单元, 并考虑相邻单元的关联作用是反铁磁相互作用, 可以更好地解释他们的实验结果^[111].

关于磁激发的研究更多集中在Se掺杂的没有长程反铁磁有序的样品上. 与母相的有序波矢 $(0.5, 0)$ 不同的是, 在Se掺杂较多的材料中, 自旋激发的谱重主要在面内波矢 $(0.5, 0.5)$ 附近^[142,143]. 从 $(0.5, 0)$ 到 $(0.5, 0.5)$ 的磁散射演变过程将在3.3节中进行讨论. 图4是一个超导样品 $\text{FeTe}_{0.35}\text{Se}_{0.65}$ ($T_c = 14 \text{ K}$) 的自旋激发谱^[144,145]. 如图4(a)所示, 在超导相, 能量小于 5 meV 时只有很少的谱重, 表明此时出现了能量为 $5 \pm 1 \text{ meV}$ 的能隙. 在能量为 5 meV 时的磁散射表现为公度, 在更高能量则表现为非公度, 这样使得色散形成一个向上开口的抛物线形状. 多个研究组都报道过相似的结果^[142,143,146,147]. 事实上, 这个色散关系是各向异性的, 即在 $(HK0)$ 面内散射图样只沿着 $[1\bar{1}0]$ 方向延伸, 尽管晶体结构呈四重对称^[77,143]. 我们认为通过考虑自旋轨道耦合效应可以解释这种各向异性^[143]. 温度升高时, 激发谱形状发生改变, 如图4(b)所示, 在高温时(如 100 K), 散射在整个能量范围内变得明显的非公度, 整个谱图呈瀑布状^[144].

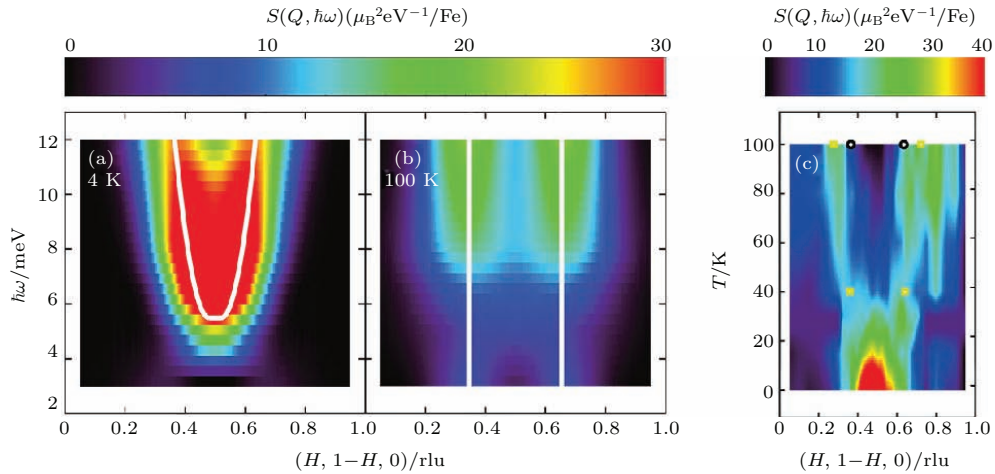


图4 (a)和(b), 超导样品 $\text{FeTe}_{0.35}\text{Se}_{0.65}$ 在低于和远高于 $T_c = 14$ K 时的磁激发谱; (c), 能量 $\hbar\omega = 5$ meV 的磁散射随温度的变化关系. 数据取自文献 [144,145]

Fig. 4. (a) and (b), magnetic spectrum of a superconducting $\text{FeTe}_{0.35}\text{Se}_{0.65}$ sample at temperature below and well above the T_c of 14 K; (c), temperature dependence of the magnetic scattering at $\hbar\omega = 5$ meV. Data are extracted from Refs. [144,145].

对于 Se 掺杂但不超导的样品 (如加入过量的铁原子), 磁散射是非公度的, 和超导样品在高温下的情况类似 [148,149]. 这表明超导样品中低能磁散射的非公度到公度的转变可能是和超导关联的发展联系在一起的. 但有趣的是, 这个转变发生在远高于 T_c 的温度 [145,49]. 从能量为 5 meV 时磁散射对温度的依赖关系 (图 4(c)) 可以看出, 低温下散射峰中心位于 (0.5, 0.5), 但是在 ~ 40 K 时散射在偏离 (0.5, 0.5) 的非公度位置出现两个峰. 理论上, Fe 的 d_{xz} 和 d_{yz} 轨道的短程有序会改变费米面的形状, 促使电子和空穴口袋发生嵌套 [150,151]. 基于费米面嵌套的图像, 这样的费米面拓扑结构能够产生公度散射 [106]. 在当前的理论框架下, 如果费米面嵌套不是强到诱发对超导有抑制作用的长程反铁磁有序的话, 嵌套的费米面对于超导的形成是有利的 [44,45,68,152,153]. 那么, 随着无序的增加或温度的升高, 短程轨道有序消失, 最终导致了非公度激发的产生和超导关联的消失 [145]. Lee 等人做过详细的无规近似 (RPA) 计算 [154], 阐明了轨道关联的作用; 计算出的自旋磁化率的虚部和实验数据比较吻合.

3.2 自旋共振模

磁激发中的中子-自旋“共振”模是非传统超导体最显著的特征之一 [155]. 这里, 共振是指在非弹性中子散射实验中观察到的在材料体系进入超导相后, 在特定的 E 和 Q 的磁散射的强

度较正常态显著地增强. 理论预测共振模出现的波矢应为连接费米面上超导能隙函数符号相反的不同部位的波矢, 因此对共振模的研究可提供关于超导配对对称性的信息 [156–159]. 这使得非弹性中子散射成为一种对相敏感 (phase sensitive) 的手段. 目前, 在几类铁基超导体中已经发现了共振磁激发 [160,161], 印证了之前认为铁基超导体的超导能隙函数在空穴和电子口袋处符号相反的观点 [162]. 在 $\text{Fe}_{1+y}\text{Te}_{1-x}\text{Se}_x$ 中, 多个研究组在波矢靠近 (0.5, 0.5) 处都观察到了共振磁激发 [130,143,146–148,163,164]. 值得注意的是这个波矢对应于磁有序波矢旋转了 45° , 并且长度拉伸了 $\sqrt{2}$ 倍, 然而对于铁磷族化合物, 磁有序和共振模出现在相同的波矢, 即 (0.5, 0.5) 处 [160,161]. 该共振模是非公度的, 峰值位于 $(0.5 \pm \delta, 0.5 \mp \delta)$ [143]. 与 T_c 之上的磁激发谱比较, 低温下 Q 为 (0.5, 0.5) 和能量为 6.5 meV 处的谱重大大增强, 如图 5(a) 所示 [163]. 与其他高温超导体相似的是, 共振模的能量 $\sim 5k_B T_c$ [81]. 伴随着共振模出现一个能量为 5 ± 1 meV 的自旋能隙; 能量低于自旋能隙的谱强度被转移到共振峰上 [130,163]. 如图 5(b) 的内插图所示, 共振峰强度随温度的变化与超导序参量的变化非常相似, 揭示了中子-自旋共振与超导之间的紧密联系.

由于超导会受到外磁场的抑制, 如果以上讨论的共振峰与超导配对紧密相关, 那么外加磁场也应当会如在 $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.6}$ [165] 和

$\text{La}_{1.82}\text{Sr}_{0.18}\text{CuO}_4$ [166] 中所观察到的那样影响自旋共振. 对 $\text{FeTe}_{0.5}\text{Se}_{0.5}$ 的研究印证了这一猜测. 在一个 7 T 的外磁场下, 共振现象在 $T_c \sim 12$ K 时出现, 起始温度低于零场下的 15 K; 同时, 随着超导受到抑制, 共振峰强度也被削弱, 但能量和峰宽没有明显变化 [130]. 美国田纳西大学的戴鹏程研究组在 $\text{BaFe}_{1.9}\text{Ni}_{0.1}\text{As}_2$ 中发现 [167], 施加 14.5 T 的磁场后, 共振能量和强度均变低, 并且共振峰的宽度也变大.

许多研究者认为自旋共振是库珀对从自旋单态到三态的一种激发 [158,159,168]. 理论上, 在磁场下进行非弹性中子散射实验能够检验这个假设, 因为外磁场能够导致 Zeeman 劈裂, 消除该自

旋三态的三重简并 [165]. 人民大学的鲍威等人在 $\text{FeTe}_{0.4}\text{Se}_{0.6}$ 上施加 14 T 的磁场后, 在原共振模能量的左右两边各产生了一个额外峰, 这一发现与共振峰是自旋三重态的假设一致 [169]. 但是后来有实验表明磁场只是抑制了共振模的强度 [170]. 最近一个研究磁场下重费米子超导体 CeCoIn_5 共振模的报道跟这个问题有一定的关系——Stock 等人发现, 磁场将原来的单个共振峰劈裂为两个, 说明该共振模是自旋双重态 [171]. 但是这个研究与之前报道的磁场仅仅降低共振能量而没有产生劈裂的结果不尽相同 [172,173]. 毫无疑问, 关于共振模本质的讨论仍将继续.

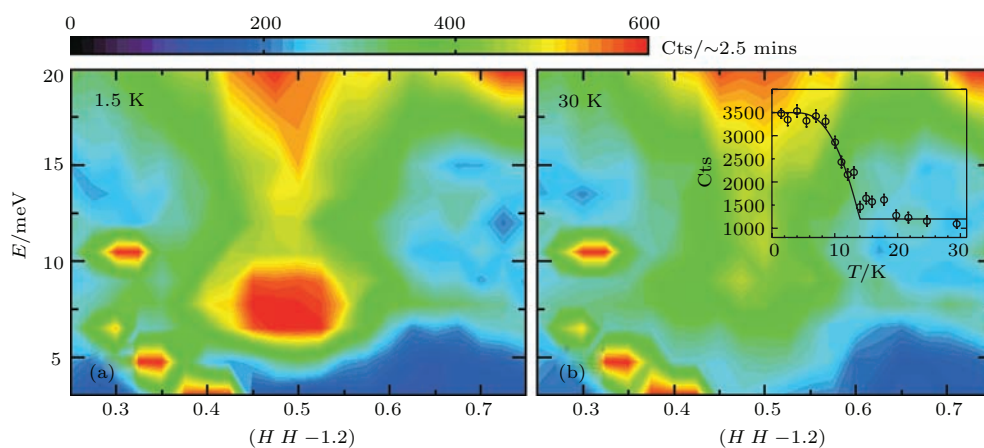


图5 $\text{FeTe}_{0.6}\text{Se}_{0.4}$ 中的中子-自旋共振模 (a) 和 (b) 分别是 1.5 K 和 30 K 的自旋激发谱; (b) 中的插图是共振峰强度对温度的依赖关系 [163]

Fig. 5. Spin resonance in $\text{FeTe}_{0.6}\text{Se}_{0.4}$. (a) and (b) show the spin excitation spectrum as a function of Q and energy at 1.5 and 30 K respectively. Inset in (b) shows the resonance intensity as a function of temperature [163].

3.3 磁激发随掺杂的演化

如第 2 节所述, 不超导的母相 Fe_{1+y}Te 的静态磁有序是双共线型的, 自旋激发从 $(0.5, 0)$ 往外发散. 但是, 如 3.1 和 3.2 中所讨论的那样, 在掺 Se 较多的超导性能较好的样品中, 在 $(0.5, 0.5)$ 附近出现很强的磁散射, 并且在温度低于 T_c 时出现自旋共振. 这种磁激发对应的是共线型自旋结构. 这很自然地引出这样的一个问题: 从母相到最佳掺杂的材料其自旋动力学是如何演化的? 关于磁关联(静态和动态的)随掺杂的演化以及对超导产生的影响已经进行了大量的理论 [115,117] 和实验研究 [62,131,142,148]. Lumsden [142] 等人对不超导的 $\text{Fe}_{1.04}\text{Te}_{0.73}\text{Se}_{0.27}$ 和超导的 $\text{FeTe}_{0.51}\text{Se}_{0.49}$ 等两个样品进行了 TOFS 的测量. 对于不超导的样品,

如图 6 (a) 中所示, 在能量范围为 5—7 meV 时, 大部分谱重集中在 $(0.5, 0)$ 附近, 也就是静态磁有序被观察到的位置. 对于超导样品, 如图 6 (b) 所示, 磁激发集中在 $(0.5, 0.5)$ 附近. 另一方面, 两个样品在 高能 (大于 120 meV) 时的激发谱定量上相似. 其他几个研究组也得到了相似的结果并作出了类似的结论: $(0.5, 0)$ 处的磁激发谱重是与双共线的静态磁有序相关的, 与超导存在着竞争关系; 在最佳掺杂时共线的自旋关联占主导地位 [62,131,148,149].

在 $\text{Fe}_{1+y}\text{Te}_{1-x}\text{Se}_x$ 的化学式中, 第二个变量 y 同样影响着磁激发. 通过对掺杂过量 Fe 效应的系统研究可以得知, 加入过量的 Fe 和减少 Se 的含量对改变自旋激发有相似的作用——随着过量 Fe 的增加, $(0.5, 0)$ 附近的低能磁激发被增强, 而 $(0.5, 0.5)$ 处的被减弱, 同时超导也受到抑制 [131].

过量Fe会在无静态磁有序的样品中诱发短程静态有序^[131]. 这些结果再次表明双共线的自旋关联对超导是不利的, 而共线的自旋关联对其则可能是

有利的. Stock等人^[174]在 Fe_{1+y}Te 中, 通过改变 y 显著改变其低能磁激发谱, 说明了过量Fe的重要影响.

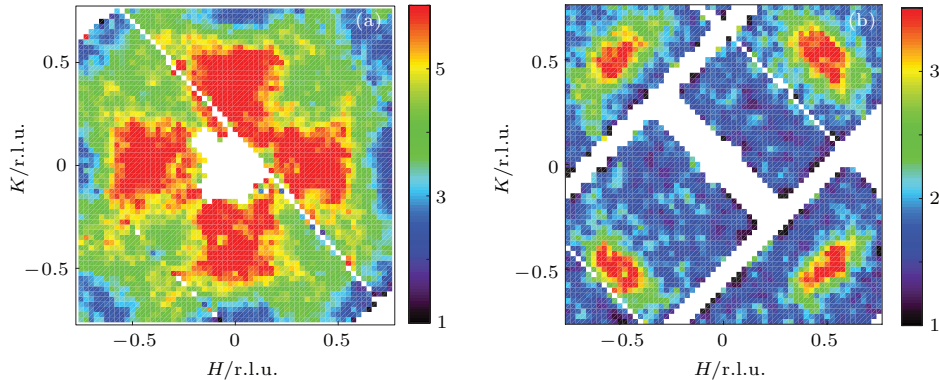


图6 (a) 非超导样品 $\text{Fe}_{1.04}\text{Te}_{0.73}\text{Se}_{0.27}$ 在5 K时在能量交换为5—7 meV的磁激发谱的等能截面图; (b) 超导样品 $\text{FeTe}_{0.51}\text{Se}_{0.49}$ 在3.5 K时的截面图^[142]

Fig. 6. (a) Constant-energy cut of the magnetic excitation spectrum at an energy transfer of 5—7 meV for the non-superconducting sample $\text{Fe}_{1.04}\text{Te}_{0.73}\text{Se}_{0.27}$ at 5 K; (b) plot for the superconducting sample $\text{FeTe}_{0.51}\text{Se}_{0.49}$ at 3.5 K^[142].

4 磁性的本质

正如铜氧化物一样, 铁基化合物中磁性的起源也是一个热门话题^[175]. 关于磁性的起源主要有三种认识: 第一种是基于强关联与洪特耦合占主导地位的局域磁矩图像^[114,176,177]; 第二种与前者刚好相反, 认为反铁磁有序是由低温下的巡游电子在发生费米面嵌套导致的自旋密度波失稳的情况下产生的^[44,68,106,112,123,178–182]. 由于铁基超导体具有的金属性行为, 该观点比较流行; 第三种介于前两种情况之间, 认为一些d电子是巡游的, 而其他的则是局域的, 这使得磁矩的大小也介于两者之间^[78,127,183,184]. 此外还有种观点认为以上的看法都不正确——磁有序仅仅是因为单电子态密度谱重转移到更低能够降低系统能量而造成的^[51].

对于 $\text{Fe}_{1+y}\text{Te}_{1-x}\text{Se}_x$, 关于其磁性来源比其他铁基超导体更富争议^[101,185]. 因为它存在更强的电子关联^[186]、更大的磁矩^[101]、以及更弱的金属性^[77]. 更重要的是, 如第2节所讨论的, 靠一个简单的基于巡游电子模型的费米面嵌套图像无法解释其磁有序^[107]. 然而, 对于(0.5, 0.5)附近的磁激发, Argyriou等人认为基于电子和空穴能带间的准粒子散射就可以将非公度的自旋激发拟合得很好^[147]. 但问题是, 该材料的磁激发谱重在能量上的积分随温度几乎没有依赖关系; 同时估算

出来的磁矩也比根据巡游电子模型所得到的结果大几个数量级^[144]. 利用X射线发射谱(XES)对 $\text{Fe}_{1+y}\text{Te}_{1-x}\text{Se}_x$ 测量发现其磁性具有双重属性, 即局域化的自旋和巡游电子都对磁矩有贡献^[187]. 这与从输运和磁化率测量得到的巡游电子和局域磁矩都存在于这个系统的结果是一致的^[28,188]. 进一步的研究表明, 这两个组份并非彼此独立^[111].

5 3d过渡金属的替代效应

在铁基超导体中, 对3d过渡金属(如Co, Ni, Cu等)的替代效应有着大量的研究^[189–192]. 早期一些关于 BaFe_2As_2 的研究显示: 例如Co等3d金属在部分替换Fe时产生的效果相当于引入了电子, 因为它比Fe多一个d电子^[189,192,193], 而这个替代过程可以用刚带模型进行定性描述^[194–196]. 然而, 这个模型的有效性受到了来自实验和理论方面的双重挑战^[190,191,197–199]. 此外, Co和Ni这两种元素与Cu的替代效应在诱发超导方面的表现迥然不同^[189,190,192,193,198,200,201]. 在 $\text{Fe}_{1+y}\text{Te}_{1-x}\text{Se}_x$ 中, 相对于Co和Ni, Cu的引入会对其导电性和超导性有着更强的抑制^[82,202–208].

我们对 $\text{Fe}_{0.98-z}\text{Cu}_z\text{Te}_{0.5}\text{Se}_{0.5}$ 样品($z = 0, 0.02, 0.1$, 分别标记为Cu0, Cu02, Cu10)进行了电阻率和中子散射测量^[209]. 电阻率结果表明随着Cu掺杂量的增多, 样品逐渐表现出绝缘性. 与Cu

掺杂 FeSe 在掺杂量大于 4% 时的情况一样, Cu02 (在其正常态) 和 Cu10 样品的电阻率具有三维莫特绝缘体的性质 [203,204]. 同时, 低能 (≤ 12 meV) 磁激发被增强, 表现为具有更高的散射强度和更大的自旋关联长度 (见图 7(a) 和 (d)). 这种由于 Cu 掺杂引起的低能磁散射的加强 (而不是减弱) 的结果是很有意思的. 一种可能的解释是 Cu 的掺杂主要是在体系中引入了局域化, 从而抑制了电子的巡游性, 导致其磁矩的局域化, 从而增强了其磁关联 [177,201]. 在 Cu 掺杂 FeSe 的情况下, Cu 的替换会引入局域磁矩; 当 Cu 掺杂为 0.12 时, 样品在低温时会发生向自旋玻璃相的转变 [203]. 另外, 在对 $\text{Fe}_{0.98-z}\text{Ni}_z\text{Te}_{0.5}\text{Se}_{0.5}$ 样品 ($z = 0.02, 0.04, 0.1$ 分别标记为 Ni02, Ni04, Ni10) 上进行的研究发现: Ni 掺杂对材料的电导和超导电性的抑制远比 Cu 要弱, 但比 Co 的替代效果要强 (见文献 [210] 的图 2); 与此同时 Ni 掺杂并未显著改变自旋关联长度, 而且对磁激发强度的增强比 Cu 弱很多, 如图 7 所示 [210]. 我们认为 Ni 和 Cu 在这些方面表现出的不同, 是由于它们杂质势的强弱不同所造成的. 对于铜而言, 它的杂质势强, 引入 Cu 的主要效果是使得系统变得局域化, 因此对电导、超导电性的削弱和磁激发的增强效果比较明显; 而对于 Co, Ni 等散射

势较弱的元素, 掺杂效果较弱. 这一结论对于 122、111 等系统也应当具有普适性 [210].

我们对母相 $\text{Fe}_{1.1}\text{Te}$ 的 Cu 掺杂效应也进行的研究发现 [211]: 1) 在 $\text{Fe}_{1.06}\text{Cu}_{0.04}\text{Te}$ 中仍保留着长程近公度磁有序, 而在 $\text{FeCu}_{0.1}\text{Te}$ 中只存在短程非公度磁有序, 而後者的结构相变并不明显, 仅在 22 K 时发生了向自旋玻璃态的转变; 2) 在 $\text{Fe}_{1.06}\text{Cu}_{0.04}\text{Te}$ 中, 最初的结构转变和磁有序发生在 41 K 处, 随后在低于 36 K 时发生从短程非公度序向长程近公度序的突然转变; 3) 非弹性散射测量表明在近公度相处存在一个 4.5 meV 的自旋各向异性性能隙. 这些结果与 Stock 等人 [174] 和 Parshall 等人 [118] 在无 Cu 掺杂的样品中得到的测量结果很类似. 这些现象可以用掺杂更多的 Cu 后耦合的 Fe 原子间自旋超交换相互作用被减弱进行解释. 尽管随着 Cu 掺杂的增加其结构相变和磁有序都受到抑制, 但是超导现象并没有出现 [211]. 其关键点似乎在于自旋关联类型. 尽管我们在 (0.5, 0) 处观察到磁有序被抑制, 却并没有观测到 C 型自旋关联被加强的证据. 这也是另外一个表明位于 (0.5, 0.5) 附近的低能磁激发对 $\text{Fe}_{1+y}\text{Te}_{1-x}\text{Se}_x$ 中的超导电性有着重要作用的证据.

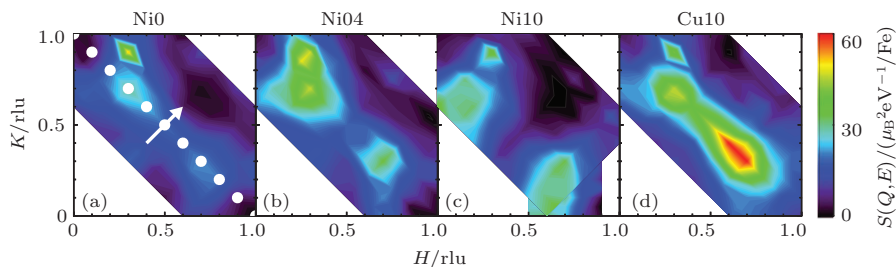


图 7 Ni0, Ni04, Ni10, Cu10 在 100 K 时 6 meV 的磁激发等能量截面图 [210]

Fig. 7. Contour plots of the magnetic scattering at a constant energy of 6 meV at 100 K for Ni0, Ni04, Ni10, and Cu10 [210].

6 结 论

我们对中子散射研究铁基超导体 $\text{Fe}_{1+y}\text{Te}_{1-x}\text{Se}_x$ 的进展进行了综述. 迄今为止, 许多关于自旋、超导、以及它们之间相互作用的结果被陆续报道出来. 从这些结果来看, 双共线的自旋关联与超导竞争, 而共线的自旋结构则对超导具有促进作用. 局域自旋与巡游电子都能够对磁激发产生贡献; 而 11 系统里 3d 金属的替代作用更主要取决于替代元素本身的化学势. 对于 Cu 这种具有很

强杂质势的取代元素, 其主要效果是增加系统的局域性.

尽管这个领域的研究已经取得了长足的进展, 但仍有很多问题存在. 例如, 尽管对于 $\text{Fe}_{1+y}\text{Te}_{1-x}\text{Se}_x$ ($x \leq 0.7$) 来说相对容易得到大的单晶, 但是要使它们成分均匀仍然比较困难 [212–214]. 同时, 过量的 Fe 有时则会使一些实验现象变得更为复杂. 因此制备出具有精确的化学成分的均匀样品对于更好地理解其中的物理机理有很大的帮助. 这个目标可以通过采用在晶体生长中使用更小的降温速率, 以及对长出来的晶体

进行退火等方法来帮助实现^[66,215–218]. 到目前为止, 11体系的单晶研究大多局限在 $x \leq 0.7$ 的样品中. 考虑到 Fe_{1+y}Se 材料中诸多新奇的特性^[89–94], 在生长 Fe_{1+y}Se 单晶方面应当付出更多的努力. 最近已经有关于生长无杂相的超导 Fe_{1+y}Se 单晶的报道^[219–220]. 在物理性质研究方面, 也还有许多的工作值得去做, 比如, 共振峰的本质和磁性的来源尚未完全理解, 仍需更深入的探索; 关于 Fe_{1+y}Se 性质的认识也还远远不足, 亟需更多的研究.

作者十分感谢文献中所列的合作者, 特别是通讯作者曾经工作过的美国布鲁克海文国家实验室和加州大学伯克利分校以及作者当前所在的南京大学的同事.

参考文献

- [1] Bardeen J, Cooper L N, Schrieffer J R 1957 *Phys. Rev.* **108** 1175
- [2] Bednorz J G, Müller K A 1986 *Z. Phys. B* **64** 189
- [3] Wu M K, Ashburn J R, Torng C J, Hor P H, Meng R L, Gao L, Huang Z J, Wang Y Q, Chu C W 1987 *Phys. Rev. Lett.* **58** 908
- [4] Zhao Z X, Chen L Q, Yang Q S, Huang Y Z, Chen G H, Tang R M, Liu G R, Cui C G, Chen L, Wang L H, Guo S Q, Li S L, Bi J Q 1987 *Kezue Tongbao* **6** 412
- [5] Lee P A, Nagaosa N, Wen X G 2006 *Rev. Mod. Phys.* **78** 17
- [6] Carlson E W, Emery V J, Kivelson S A, Orgad D 2002 *The Physics of Conventional and Unconventional Superconductors* chapter Concepts in High Temperature Superconductivity (Springer-Verlag)
- [7] Birgeneau R J, Stock C, Tranquada J M, Yamada K 2006 *J. Phys. Soc. Jpn.* **75** 111003
- [8] Kastner M A, Birgeneau R J, Shirane G, Endoh Y 1998 *Rev. Mod. Phys.* **70** 897
- [9] Orenstein J, Millis A J 2000 *Science* **288** 468
- [10] Mott N F 1949 *Proc. Phys. Soc. A* **62** 416
- [11] Mott N F, Peierls R 1937 *Proc. Phys. Soc. London* **49** 72
- [12] Kamihara Y, Hiramatsu H, Hirano M, Kawamura R, Yanagi H, Kamiya T, Hosono H 2006 *J. Am. Chem. Soc.* **128** 10012
- [13] Kamihara Y, Watanabe T, Hirano M, Hosono H 2008 *J. Am. Chem. Soc.* **130** 3296
- [14] Sefat A S, Jin R, McGuire M A, Sales B C, Singh D J, Mandrus D 2008 *Phys. Rev. Lett.* **101** 117004
- [15] Rotter M, Tegel M, Johrendt D 2008 *Phys. Rev. Lett.* **101** 107006
- [16] Chen G F, Li Z, Li G, Hu W Z, Dong J, Zhang X D, Zheng P, Wang N L, Luo J L 2008 *Chin. Phys. Lett.* **25** 3403
- [17] Inosov D S, Leineweber A, Yang X, Park J T, Christensen N B, Dinnebier R, Sun G L, Niedermayer C, Haug D, Stephens P W, Stahn J, Khvostikova O, Lin C T, Andersen O K, Keimer B, Hinkov V 2009 *Phys. Rev. B* **79** 224503
- [18] Deng Z, Wang X C, Liu Q, Zhang S J, Lv Y X, Zhu J L, Yu R, Jin C 2009 *Euro. Phys. Lett.* **87** 37004
- [19] Wang X C, Liu Q Q, Lv Y X, Gao W B, Yang L X, Yu R C, Li F Y, Jin C Q 2008 *Solid State Commun.* **148** 538
- [20] Pitcher M J, Parker D R, Adamson P, Herkelrath S J C, Boothroyd A T, Clarke S J 2008 *Chem. Commun.* **45** 5918
- [21] Chu C W, Chen F, Gooch M, Guloy A M, Lorenz B, Lv B, Sasmal K, Tang Z J, Tapp J H, Xue Y Y 2009 *Physica C* **469** 326
- [22] Tapp J H, Tang Z, Lv B, Sasmal K, Lorenz B, Chu P C W, Guloy A M 2008 *Phys. Rev. B* **78** 060505
- [23] Deng Z, Wang X C, Liu Q Q, Zhang S J, Lv Y X, Zhu J L, Yu R C, Jin C Q 2009 *Euro. Phys. Lett.* **87** 37004
- [24] Zhang S J, Wang X C, Liu Q Q, Lv Y X, Yu X H, Lin Z J, Zhao Y S, Wang L, Ding Y, Mao H K, Jin C Q 2009 *Euro. Phys. Lett.* **88** 47008
- [25] 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. USA* **105** 14262
- [26] Yeh K W, Huang T W, Huang Y L, Chen T K, Hsu F C, Wu P M, Lee Y C, Chu Y Y, Chen C L, Luo J Y, Yan D C, Kuen Wu M 2008 *Euro. Phys. Lett.* **84** 37002
- [27] Sales B C, Sefat A S, McGuire M A, Jin R Y, Mandrus D, Mozharivskiy Y 2009 *Phys. Rev. B* **79** 094521
- [28] Chen G F, Chen Z G, Dong J, Hu W Z, Li G, Zhang X D, Zheng P, Luo J L, Wang N L 2009 *Phys. Rev. B* **79** 140509
- [29] Fang M H, Pham H M, Qian B, Liu T J, Vehstedt E K, Liu Y, Spinu L, Mao Z Q 2008 *Phys. Rev. B* **78** 224503
- [30] Zhu X, Han F, Mu G, Cheng P, Shen B, Zeng B, Wen H H 2009 *Phys. Rev. B* **79** 220512
- [31] Ogino H, Matsumura Y, Katsura Y, Ushiyama K, Horii S, Kishio K, Shimoyama J i 2009 *Supercon. Sci. Tech.* **22** 075008
- [32] Guo J, Jin S, Wang G, Wang S, Zhu K, Zhou T, He M, Chen X 2010 *Phys. Rev. B* **82** 180520
- [33] Mizuguchi Y, Takeya H, Kawasaki Y, Ozaki T, Tsuda S, Yamaguchi T, Takano Y 2011 *Appl. Phys. Lett.* **98** 042511
- [34] Wang A F, Ying J J, Yan Y J, Liu R H, Luo X G, Li Z Y, Wang X F, Zhang M, Ye G J, Cheng P, Xiang Z J, Chen X H 2011 *Phys. Rev. B* **83** 060512
- [35] Krzton-Maziopa A, Shermadini Z, Pomjakushina E, Pomjakushin V, Bendele M, Amato A, Khasanov R, Luetkens H, Conder K 2011 *J. Phys. Condens. Matter* **23** 052203
- [36] Wang H D, Dong C H, Li Z J, Mao Q H, Zhu S S, Feng C M, Yuan H Q, Fang M H 2011 *Euro. Phys. Lett.* **93** 47004

- [37] Zhao J, Huang Q, de la Cruz C, Lynn J W, Lumsden M D, Ren Z A, Yang J, Shen X, Dong X, Zhao Z, Dai P 2008 *Phys. Rev. B* **78** 132504
- [38] Lester C, Chu J H, Analytis J G, Capelli S C, Erickson A S, Condrón C L, Toney M F, Fisher I R, Hayden S M 2009 *Phys. Rev. B* **79** 144523
- [39] Qiu Y, Bao W, Huang Q, Yildirim T, Simmons J M, Green M A, Lynn J W, Gasparovic Y C, Li J, Wu T, Wu G, Chen X H 2008 *Phys. Rev. Lett.* **101** 257002
- [40] Kumar N, Chi S, Chen Y, Rana K G, Nigam A K, Thamizhavel A, Ratcliff W, II, Dhar S K, Lynn J W 2009 *Phys. Rev. B* **80** 144524
- [41] Wang C, Li L, Chi S, Zhu Z, Ren Z, Li Y, Wang Y, Lin X, Luo Y, Jiang S, Xu X, Cao G, Xu Z 2008 *Euro. Phys. Lett.* **83** 67006
- [42] 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
- [43] Ma F, Lu Z Y 2008 *Phys. Rev. B* **78** 033111
- [44] Mazin I I, Singh D J, Johannes M D, Du M H 2008 *Phys. Rev. Lett.* **101** 057003
- [45] Kuroki K, Onari S, Arita R, Usui H, Tanaka Y, Kontani H, Aoki H 2008 *Phys. Rev. Lett.* **101** 087004
- [46] Kontani H, Onari S 2010 *Phys. Rev. Lett.* **104** 15157001
- [47] Mazin I 2010 *Nature* **464** 183
- [48] de la Cruz C, Huang Q, Lynn J W, Li J, Ratcliff W, Zarestzky J L, Mook H A, Chen G F, Luo J L, Wang N L, Dai P 2008 *Nature* **453** 899
- [49] 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
- [50] Chen Y, Lynn J W, Li J, Li G, Chen G F, Luo J L, Wang N L, Dai P, Cruz C, Mook H A 2008 *Phys. Rev. B* **78** 064515
- [51] Johannes M D, Mazin I I 2009 *Phys. Rev. B* **79** 220510
- [52] Wilson S D, Yamani Z, Rotundu C R, Freelon B, Bourret-Courchesne E, Birgeneau R J 2009 *Phys. Rev. B* **79** 184519
- [53] Kofu M, Qiu Y, Bao W, Lee S H, Chang S, Wu T, Wu G, Chen X H 2009 *New J. Phys.* **11** 055001
- [54] Zhao J, Huang Q, Cruz C, Li S, Lynn J W, Chen Y, Green M A, Chen G F, Li G, Li Z, Luo J L, Wang N L, Dai P 2008 *Nature Mater.* **7** 953
- [55] Luetkens H, Klauss H H, Kraken M, Litterst F J, Dellmann T, Klingeler R, Hess C, Khasanov R, Amato A, Baines C, Hamann-Borrero J, Leps N, Kondrat A, Behr G, Werner J, Buechner B 2009 *Nature Mater.* **8** 305
- [56] Drew A J, Niedermayer C, Baker P J, Pratt F L, Blundell S J, Lancaster T, Liu R H, Wu G, Chen X H, Watanabe I, Malik V K, Dubroka A, Roessle M, Kim K W, Baines C, Bernhard C 2009 *Nature Mater.* **8** 310
- [57] Rotter M, Pangerl M, Tegel M, Johrendt D 2008 *Angew. Chem. Int. Ed.* **47** 7949
- [58] Chen H, Ren Y, Qiu Y, Bao W, Liu R H, Wu G, Wu T, Xie Y L, Wang X F, Huang Q, Chen X H 2009 *Euro. Phys. Lett.* **85** 17006
- [59] Fang L, Luo H, Cheng P, Wang Z, Jia Y, Mu G, Shen B, Mazin I I, Shan L, Ren C, Wen H H 2009 *Phys. Rev. B* **80** 140508
- [60] Chu J H, Analytis J G, Kucharczyk C, Fisher I R 2009 *Phys. Rev. B* **79** 014506
- [61] Khasanov R, Bendele M, Amato A, Babkevich P, Boothroyd A T, Cervellino A, Conder K, Gvasaliya S N, Keller H, Klauss H H, Luetkens H, Pomjakushin V, Pomjakushina E, Roessli B 2009 *Phys. Rev. B* **80** 140511
- [62] 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 *Nature Mater.* **9** 718
- [63] Paulose P L, Yadav C S, Subhedar K M 2010 *Euro. Phys. Lett.* **90** 27011
- [64] Katayama N, Ji S, Louca D, Lee S H, Fujita M, Sato T J, Wen J S, Xu Z J, Gu G D, Xu G, Lin Z W, Enoki M, Chang S, Yamada K, Tranquada J M 2010 *J. Phys. Soc. Jpn.* **79** 113702
- [65] Mizuguchi Y, Takano Y 2010 *J. Phys. Soc. Jpn.* **79** 102001
- [66] Dong C, Wang H, Li Z, Chen J, Yuan H Q, Fang M 2011 *Phys. Rev. B* **84** 224506
- [67] Dong J, Zhang H J, Xu G, Li Z, Li G, Hu W Z, Wu D, Chen G F, Dai X, Luo J L, Fang Z, Wang N L 2008 *Euro. Phys. Lett.* **83** 27006
- [68] Cvetkovic V, Tesanovic Z 2009 *Euro. Phys. Lett.* **85** 37002
- [69] Graser S, Maier T A, Hirschfeld P J, Scalapino D J 2009 *New J. Phys.* **11** 025016
- [70] Kotegawa H, Masaki S, Awai Y, Tou H, Mizuguchi Y, Takano Y 2008 *J. Phys. Soc. Jpn.* **77** 113703
- [71] Onari S, Kontani H 2012 *Phys. Rev. Lett.* **109** 137001
- [72] Kontani H, Inoue Y, Saito T, Yamakawa Y, Onari S 2012 *Solid State Communications* **152** 718
- [73] Stewart G R 2011 *Rev. Mod. Phys.* **83** 1589
- [74] Norman M R 2011 *Science* **332** 196
- [75] Hirschfeld P J, Korshunov M M, Mazin I I 2011 *Reports on Progress in Physics* **74** 124508
- [76] Wang F, Lee D H 2011 *Science* **332** 200
- [77] Wen J, Xu G, Gu G, Tranquada J M, Birgeneau R J 2011 *Rep. Prog. Phys.* **74** 124503
- [78] Dai P, Hu J, Dagotto E 2012 *Nat. Phys.* **8** 10709
- [79] Ishida K, Nakai Y, Hosono H 2009 *J. Phys. Soc. Jpn.* **78** 062001
- [80] Lynn J W, Dai P 2009 *Physica C* **469** 469
- [81] Lumsden M D, Christianson A D 2010 *J. Phys.: Condens. Matter* **22** 203203
- [82] Wu M, Hsu F, Yeh K, Huang T, Luo J, Wang M, Chang H, Chen T, Rao S, Mok B, Chen C, Huang Y, Ke C, Wu P, Chang A, Wu C, Perng T 2009 *Physica C* **469** 340
- [83] Canfield P C, Bud'ko S L 2010 *Annual Rev. Condens. Matter Phys.* **1** 27
- [84] Johnston D C 2010 *Adv. Phys.* **59** 803
- [85] Paglione J, Greene R L 2010 *Nature Phys.* **6** 645

- [86] Medvedev S, McQueen T M, Trojan I, Palasyuk T, Erements M I, Cava R J, Naghavi S, Casper F, Ksenofontov V, Wortmann G, Felser C 2009 *Nature Mater.* **8** 630
- [87] Margadonna S, Takabayashi Y, Ohishi Y, Mizuguchi Y, Takano Y, Kagayama T, Nakagawa T, Takata M, Prasadides K 2009 *Phys. Rev. B* **80** 064506
- [88] Masaki S, Kotegawa H, Hara Y, Tou H, Murata K, Mizuguchi Y, Takano Y 2009 *J. Phys. Soc. Jpn.* **78** 063704
- [89] 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, Wang L, Chen X, Ma X, Xue Q K 2012 *Chin. Phys. Lett.* **29** 037402
- [90] 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 *Nat. Mater.* **12** 634
- [91] 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 *Nat. Mater.* **12** 605
- [92] Liu D, Zhang W, Mou D, He J, Ou Y B, Wang Q Y, Li Z, Wang L, Zhao L, He S, Peng Y, Liu X, Chen C, Yu L, Liu G, Dong X, Zhang J, Chen C, Xu Z, Hu J, Chen X, Ma X, Xue Q, Zhou X J 2012 *Nat. Commun.* **3** 931
- [93] Ge J F, Liu Z L, Liu C, Gao CL, Qian D, Xue Q K, Liu Y, Jia J F 2015 *Nat Mater* **14** 3 285
- [94] 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
- [95] Bozovic I, Ahn C 2014 *Nat. Phys.* **10** 892
- [96] Currat R 2006 *Neutron and X-Ray Spectroscopy* chapter Three-Axis Inelastic Neutron Scattering Springer
- [97] Shirane G, Shapiro S M, Tranquada J M 2002 *Neutron Scattering with a Triple-Axis Spectrometer: Basic Techniques* (Cambridge: Cambridge University Press)
- [98] Squires G L 1996 *Introduction to the Theory of Thermal Neutron Scattering* Mineola (NY: Dover)
- [99] Zaliznyak I A, Lee S H 2005 *Modern Techniques for Characterizing Magnetic Materials* chapter Magnetic Neutron Scattering (Heidelberg: Springer)
- [100] Xu G, Xu Z, Tranquada J M 2013 *Rev. Sci. Instr.* **84** 083906
- [101] Bao W, Qiu Y, Huang Q, Green M A, Zajdel P, Fitzsimmons M R, Zhernenkov M, Chang S, Fang M, Qian B, Vehstedt E K, Yang J, Pham H M, Spinu L, Mao Z Q 2009 *Phys. Rev. Lett.* **102** 247001
- [102] Li S, de la Cruz C, Huang Q, Chen Y, Lynn J W, Hu J, Huang Y L, Hsu F C, Yeh K W, Wu M K, Dai P 2009 *Phys. Rev. B* **79** 054503
- [103] Martinelli A, Palenzona A, Tropeano M, Ferdeghini C, Putti M, Cimberle M R, Nguyen T D, Affronte M, Ritter C 2010 *Phys. Rev. B* **81** 094115
- [104] Mizuguchi Y, Tomioka F, Tsuda S, Yamaguchi T, Takano Y 2009 *Appl. Phys. Lett.* **94** 012503
- [105] Mizuguchi Y, Tomioka F, Tsuda S, Yamaguchi T, Takano Y 2009 *Physica C* **469** 1027
- [106] Subedi A, Zhang L, Singh D J, Du M H 2008 *Phys. Rev. B* **78** 134514
- [107] Xia Y, Qian D, Wray L, Hsieh D, Chen G F, Luo J L, Wang N L, Hasan M Z 2009 *Phys. Rev. Lett.* **103** 037002
- [108] Nakayama K, Sato T, Richard P, Kawahara T, Sekiba Y, Qian T, Chen G F, Luo J L, Wang N L, Ding H, Takahashi T 2010 *Phys. Rev. Lett.* **105** 197001
- [109] Fruchart D, Convert P, Wolfers P, Madar R, Senateur J P, Fruchart R 1975 *Mater. Res. Bull.* **10** 169
- [110] Balatsky A V, Parker D 2009 *Physics* **2** 59
- [111] Zaliznyak I A, Xu Z, Tranquada J M, Gu G, Tsvetlik A M, Stone M B 2011 *Phys. Rev. Lett.* **107** 216403
- [112] Han M J, Savrasov S Y 2009 *Phys. Rev. Lett.* **103** 067001
- [113] Ma F, Ji W, Hu J, Lu Z Y, Xiang T 2009 *Phys. Rev. Lett.* **102** 177003
- [114] Turner A M, Wang F, Vishwanath A 2009 *Phys. Rev. B* **80** 224504
- [115] Fang C, Bernevig B A, Hu J 2009 *Euro. Phys. Lett.* **86** 67005
- [116] Moon C Y, Choi H J 2010 *Phys. Rev. Lett.* **104** 057003
- [117] Yin W G, Lee C C, Ku W 2010 *Phys. Rev. Lett.* **105** 107004
- [118] Parshall D, Chen G, Pintschovius L, Lamago D, Wolf T, Radzihovskiy L, Reznik D 2012 *Phys. Rev. B* **85** 140515
- [119] Stock C, Rodriguez E E, Green M A 2012 *Phys. Rev. B* **85** 094507
- [120] Fobes D, Zaliznyak I A, Xu Z, Zhong R, Gu G, Tranquada J M, Harriger L, Singh D, Garlea V O, Lumsden M, Winn B 2014 *Phys. Rev. Lett.* **112** 187202
- [121] Liu X, Lee C C, Xu Z J, Wen J S, Gu G, Ku W, Tranquada J M, Hill J P 2011 *Phys. Rev. B* **83** 184523
- [122] Thampy V, Kang J, Rodriguez-Rivera J A, Bao W, Savici A T, Hu J, Liu T J, Qian B, Fobes D, Mao Z Q, Fu C B, Chen W C, Ye Q, Erwin R W, Gentile T R, Tesanovic Z, Broholm C 2012 *Phys. Rev. Lett.* **108** 107002
- [123] Zhang L, Singh D J, Du M H 2009 *Phys. Rev. B* **79** 012506
- [124] Rodriguez E E, Stock C, Zajdel P, Krycka K L, Majkrzak C F, Zavalij P, Green M A 2011 *Phys. Rev. B* **84** 064403
- [125] Zaliznyak I A, Xu Z J, Wen J S, Tranquada J M, Gu G D, Solovyov V, Glazkov V N, Zheludev A I, Garlea V O, Stone M B 2012 *Phys. Rev. B* **85** 085105
- [126] Mizuguchi Y, Hamada K, Goto K, Takatsu H, Kadowaki H, Miura O 2012 *Solid State Commun.* **152** 12 1047
- [127] Ducatman S, Fernandes R M, Perkins N B 2014 *Phys. Rev. B* **90** 165123
- [128] Enayat M, Sun Z, Singh U R, Aluru R, Schmaus S, Yaresko A, Liu Y, Lin C, Tsurkan V, Loidl A, Deisenhofer J, Wahl P 2014 *Science* **345** 653
- [129] Wen J H, Xu G Y, Zhijun Xu, Zhi Wei Lin, Qiang L i, Ratcliff W, Gu G, Tranquada J M 2009 *Phys. Rev. B* **80** 104506
- [130] Wen J, Xu G, Xu Z, Lin Z W, Li Q, Chen Y, Chi S, Gu G, Tranquada J M 2010 *Phys. Rev. B* **81** 100513
- [131] Xu Z, Wen J, Xu G, Jie Q, Lin Z, Li Q, Chi S, Singh D K, Gu G, Tranquada J M 2010 *Phys. Rev. B* **82** 104525

- [132] Bendele M, Babkevich P, Katrych S, Gvasaliya S N, Pomjakushina E, Conder K, Roessli B, Boothroyd A T, Khasanov R, Keller H 2010 *Phys. Rev. B* **82** 212504
- [133] McQueen T M, Williams A J, Stephens P W, Tao J, Zhu Y, Ksenofontov V, Casper F, Felser C, Cava R J 2009 *Phys. Rev. Lett.* **103** 057002
- [134] Margadonna S, Takabayashi Y, McDonald M T, Kasperkiewicz K, Mizuguchi Y, Takano Y, Fitch A N, Suard E, Prassides K 2008 *Chem. Commun.* p5607
- [135] Pomjakushina E, Conder K, Pomjakushin V, Bendele M, Khasanov R 2009 *Phys. Rev. B* **80** 024517
- [136] McQueen T M, Huang Q, Ksenofontov V, Felser C, Xu Q, Zandbergen H, Hor Y S, Allred J, Williams A J, Qu D, Checkelsky J, Ong N P, Cava R J 2009 *Phys. Rev. B* **79** 014522
- [137] Imai T, Ahilan K, Ning F L, McQueen T M, Cava R J 2009 *Phys. Rev. Lett.* **102** 177005
- [138] Bendele M, Amato A, Conder K, Elender M, Keller H, Klauss H H, Luetkens H, Pomjakushina E, Raselli A, Khasanov R 2010 *Phys. Rev. Lett.* **104** 087003
- [139] Cao H Y, Tan S, Xiang H, Feng D L, Gong X G 2014 *Phys. Rev. B* **89** 014501
- [140] Cao H Y, Chen S, Xiang H, Gong X G 2015 *Phys. Rev. B* **91** 020504
- [141] Lipscombe O J, Chen G F, Fang C, Perring T G, Abernathy D L, Christianson A D, Egami T, Wang N, Hu J, Dai P 2011 *Phys. Rev. Lett.* **106** 057004
- [142] Lumsden M D, Christianson A D, Goremychkin E A, Nagler S E, Mook H A, Stone M B, Abernathy D L, Guidi T, MacDougall G J, De La Cruz C, Sefat A S, McGuire M A, Sales B C, Mandrus D 2010 *Nature Phys.* **6** 182
- [143] Lee S H, Xu G, Ku W, Wen J S, Lee C C, Katayama N, Xu Z J, Ji S, Lin Z W, Gu G D, Yang H B, Johnson P D, Pan Z H, Valla T, Fujita M, Sato T J, Chang S, Yamada K, Tranquada J M 2010 *Phys. Rev. B* **81** 220502
- [144] Xu Z, Wen J, Xu G, Chi S, Ku W, Gu G, Tranquada J M 2011 *Phys. Rev. B* **84** 052506
- [145] Xu Z, Wen J, Zhao Y, Matsuda M, Ku W, Liu X, Gu G, Lee D H, Birgeneau R J, Tranquada J M, Xu G 2012 *Phys. Rev. Lett.* **109** 227002
- [146] Li S, Zhang C, Wang M, Luo Hq, Lu X, Faulhaber E, Schneidewind A, Link P, Hu J, Xiang T, Dai P 2010 *Phys. Rev. Lett.* **105** 157002
- [147] Argyriou D N, Hiess A, Akbari A, Eremin I, Korshunov M M, Hu J, Qian B, Mao Z, Qiu Y, Broholm C, Bao W 2010 *Phys. Rev. B* **81** 220503
- [148] Babkevich P, Bendele M, Boothroyd A T, Conder K, Gvasaliya S N, Khasanov R, Pomjakushina E, Roessli B 2010 *J. Phys. Condens. Matter* **22** 142202
- [149] Xu Z, Wen J, Schneeloch J, Christianson A D, Birgeneau R J, Gu G, Tranquada J M, Xu G 2014 *Phys. Rev. B* **89** 174517
- [150] Zhai H, Wang F, Lee D H 2009 *Phys. Rev. B* **80** 064517
- [151] Fernandes R M, Chubukov A V, Knolle J, Eremin I, Schmalian J 2012 *Phys. Rev. B* **85** 024534
- [152] Ikeda H, Arita R, Kuneš J 2010 *Phys. Rev. B* **81** 054502
- [153] Chubukov A V, Vavilov M G, Vorontsov A B 2009 *Phys. Rev. B* **80** 140515
- [154] Lee W C, Lv W, Tranquada J M, Phillips P W 2012 *Phys. Rev. B* **86** 094516
- [155] Yu G, Li Y, Motoyama E M, Greven M 2009 *Nature Phys.* **5** 873
- [156] Maier T A, Scalapino D J 2008 *Phys. Rev. B* **78** 020514
- [157] Maier T A, Graser S, Scalapino D J, Hirschfeld P 2009 *Phys. Rev. B* **79** 134520
- [158] Demler E, Zhang S C 1995 *Phys. Rev. Lett.* **75** 4126
- [159] Batista C D, Ortiz G, Balatsky A V 2001 *Phys. Rev. B* **64** 172508
- [160] Christianson A D, Goremychkin E A, Osborn R, Rosenkranz S, Lumsden M D, Malliakas C D, I S Todorov, Claus H, Chung D Y, Kanatzidis M G, Bewley R I, Guidi T 2008 *Nature* **456** 930
- [161] Shamoto Si, Ishikado M, Christianson A D, Lumsden M D, Wakimoto S, Kodama K, Iyo A, Arai M 2010 *Phys. Rev. B* **82** 172508
- [162] Mazin I I, Schmalian J 2009 *Physica C* **469** 614
- [163] Qiu Y, Bao W, Zhao Y, Broholm C, Stanev V, Tesanovic Z, Gasparovic Y C, Chang S, Hu J, Qian B, Fang M, Mao Z 2009 *Phys. Rev. Lett.* **103** 067008
- [164] Mook H A, Lumsden M D, Christianson A D, Nagler S E, Sales B C, Jin R, McGuire M A, Sefat A S, Mandrus D, Egami T, dela Cruz C 2010 *Phys. Rev. Lett.* **104** 187002
- [165] Dai P, Mook H A, Aeppli G, Hayden S M, Doğan F, Yu J, Yanagida Y, Takashima H, Inaguma Y, Itoh M, Nakamura T 2000 *Nature* **406** 965
- [166] Tranquada J M, Lee C H, Yamada K, Lee Y S, Regnault L P, Rønnow H M 2004 *Phys. Rev. B* **69** 174507
- [167] Zhao J, Regnault L P, Zhang C, Wang M, Li Z, Zhou F, Zhao Z, Fang C, Hu J, Dai P 2010 *Phys. Rev. B* **81** 180505
- [168] Bourges P, Keimer B, Pailh'oes S, Regnault L, Sidis Y, Ulrich C 2005 *Physica C* **424** 45
- [169] Bao W, Savici A T, Granroth G E, Broholm C, Habicht K, Qiu Y, Hu J, Liu T, Mao Z Q 2010 *arXiv:1002.1617*
- [170] Li S, Lu X, Wang M, Luo Hq, Wang M, Zhang C, Faulhaber E, Regnault L P, Singh D, Dai P 2011 *Phys. Rev. B* **84** 024518
- [171] Stock C, Broholm C, Zhao Y, Demmel F, Kang H J, Rule K C, Petrovic C 2012 *Phys. Rev. Lett.* **109** 167207
- [172] Raymond S, Panarin J, Lapertot G, Flouquet J 2011 *Journal of the Physical Society of Japan* **80SB Supplement B** SB023
- [173] Panarin J, Raymond S, Lapertot G, Flouquet J 2009 *Journal of the Physical Society of Japan* **78** **11** 113706
- [174] Stock C, Rodriguez EE, Green M A, Zavalij P, Rodriguez-Rivera J A 2011 *Phys. Rev. B* **84** 045124
- [175] Xu G, Gu G D, Hückler M, Fauque B, Perring T G, Regnault L P, Tranquada J M 2009 *Nature Phys.* **5** 642
- [176] Klingeler R, Leps N, Hellmann I, Popa A, Stockert U, Hess C, Kataev V, Grafe H J, Hammerath F, Lang G, Wurmehl S, Behr G, Harnagea L, Singh S, Büchner B 2010 *Phys. Rev. B* **81** 024506

- [177] Chadov S, Schärff D, Fecher G H, Felser C, Zhang L, Singh D J 2010 *Phys. Rev. B* **81** 104523
- [178] Singh D J, Du M H 2008 *Phys. Rev. Lett.* **100** 237003
- [179] Diallo S O, Antropov V P, Perring T G, Broholm C, Pulikkotil J J, Ni N, Bud'ko S L, Canfield P C, Kreyssig A, Goldman A I, McQueeney R J 2009 *Phys. Rev. Lett.* **102** 187206
- [180] Yin Z P, Leb'egue S, Han M J, Neal B P, Savrasov S Y, Pickett W E 2008 *Phys. Rev. Lett.* **101** 047001
- [181] Matan K, Morinaga R, Iida K, Sato T J 2009 *Phys. Rev. B* **79** 054526
- [182] Ke L, van Schilfgaarde M, Pulikkotil J, Kotani T, Antropov V 2011 *Phys. Rev. B* **83** 060404
- [183] Wu J, Phillips P, Castro Neto A H 2008 *Phys. Rev. Lett.* **101** 126401
- [184] Liu M, Harriger L W, Luo H, Wang M, Ewings R A, Guidi T, Park H, Haule K, Kotliar G, Hayden S M, Dai P 2012 *Nat Phys.* **8** 376
- [185] Tesanovic Z 2009 *Physics* **2** 60
- [186] Qazilbash M M, Hamlin J J, Baumbach R E, Zhang L, Singh D J, Maple M B, Basov D N 2009 *Nature Phys.* **5** 647
- [187] Gretarsson H, Lupascu A, Kim J, Casa D, Gog T, Wu W, Julian S R, Xu Z J, Wen J S, Gu G D, Yuan R H, Chen Z G, Wang N L, Khim S, Kim K H, Ishikado M, Jarrige I, Shamoto S, Chu J H, Fisher I R, Kim Y J 2011 *Phys. Rev. B* **84** 100509
- [188] Hu R, Bozin E S, Warren J B, Petrovic C 2009 *Phys. Rev. B* **80** 214514
- [189] Canfield P C, Bud'ko S L, Ni N, Yan J Q, Kracher A 2009 *Phys. Rev. B* **80** 060501
- [190] Ideva S, Yoshida T, Nishi I, Fujimori A, Kotani Y, Ono K, Nakashima Y, Yamaichi S, Sasagawa T, Nakajima M, Kihou K, Tomioka Y, Lee C H, Iyo A, Eisaki H, Ito T, Uchida S, Arita R 2013 *Phys. Rev. Lett.* **110** 107007
- [191] Levy G, Sutarto R, Chevrier D, Regier T, Blyth R, Geck J, Wurmehl S, Harnagea L, Wadati H, Mizokawa T, Elfimov I S, Damascelli A, Sawatzky G A 2012 *Phys. Rev. Lett.* **109** 077001
- [192] Liu C, Palczewski A D, Dhaka R S, Kondo T, Fernandes R M, Mun E D, Hodovanets H, Thaler A N, Schmalian J, Bud'ko S L, Canfield P C, Kaminski A 2011 *Phys. Rev. B* **84** 020509
- [193] Ni N, Thaler A, Yan J Q, Kracher A, Colombier E, Bud'ko S L, Canfield P C, Hannahs S T 2010 *Phys. Rev. B* **82** 024519
- [194] Neupane M, Richard P, Xu Y M, Nakayama K, Sato T, Takahashi T, Federov A V, Xu G, Dai X, Fang Z, Wang Z, Chen G F, Wang N L, Wen H H, Ding H 2011 *Phys. Rev. B* **83** 094522
- [195] Nakamura K, Arita R, Ikeda H 2011 *Phys. Rev. B* **83** 144512
- [196] Konbu S, Nakamura K, Ikeda H, Arita R 2011 *Journal of the Physical Society of Japan* **80** **12** 123701
- [197] Wadati H, Elfimov I, Sawatzky G A 2010 *Phys. Rev. Lett.* **105** 157004
- [198] Berlijn T, Lin C H, Garber W, Ku W 2012 *Phys. Rev. Lett.* **108** 207003
- [199] Bittar E M, Adriano C, Garitezi T M, Rosa P F S, Mendonça Ferreira L, Garcia F, Azevedo GdM, Pagliuso P G, Granado E 2011 *Phys. Rev. Lett.* **107** 267402
- [200] Kuo H H, Chu J H, Riggs S C, Yu L, McMahon P L, De Greve K, Yamamoto Y, Analytis J G, Fisher I R 2011 *Phys. Rev. B* **84** 054540
- [201] McLeod J A, Buling A, Green R J, Boyko T D, Skorikov N A, Kurmaev E Z, Neumann M, Finkelstein L D, Ni N, Thaler A, Bud'ko S L, Canfield P C, Moewes A 2012 *Journal of Physics: Condensed Matter* **24** 215501
- [202] Thomas E L, Wong-Ng W, Phelan D, Millican J N 2009 *J. Appl. Phys.* **105** 073906
- [203] Williams A J, McQueen T M, Ksenofontov V, Felser C, Cava R J 2009 *J. Phys. Condens. Matter* **21** 305701
- [204] Huang T W, Chen T K, Yeh K W, Ke C T, Chen C L, Huang Y L, Hsu F C, Wu M K, Wu P M, Avdeev M, Studer A J 2010 *Phys. Rev. B* **82** 104502
- [205] Mizuguchi Y, Tomioka F, Tsuda S, Yamaguchi T, Takano Y 2009 *J. Phys. Soc. Jpn.* **78** 074712
- [206] Gawryluk D J, Fink-Finowicki J, Wisniewski A, Puzniak R, Domukhovski V, Diduszko R, Kozłowski M, Berkowski M 2011 *Supercond. Sci. Tech.* **24** 065011
- [207] Shipra R, Takeya H, Hirata K, Sundaresan A 2010 *Physica C* **470** 528
- [208] Zhang S B, Lei H, Zhu X, Li G, Wang B, Li L, Zhu X, Song W, Yang Z, Sun Y 2009 *Physica C* **469** 1958
- [209] Wen J, Li S, Xu Z, Zhang C, Matsuda M, Sobolev O, Park J T, Christianson A D, Bourret-Courchesne E, Li Q, Gu G, Lee D H, Tranquada J M, Xu G, Birgeneau R J 2013 *Phys. Rev. B* **88** 144509
- [210] Wang J, Zhong R, Li S, Gan Y, Xu Z, Zhang C, Ozaki T, Matsuda M, Zhao Y, Li Q, Xu G, Gu G, Tranquada J M, Birgeneau R J, Wen J 2015 *Phys. Rev. B* **91** 014501
- [211] Wen J, Xu Z, Xu G, Lumsden M D, Valdivia P N, Bourret-Courchesne E, Gu G, Lee D H, Tranquada J M, Birgeneau R J 2012 *Phys. Rev. B* **86** 024401
- [212] Joseph B, Iadecola A, Puri A, Simonelli L, Mizuguchi Y, Takano Y, Saini N L 2010 *Phys. Rev. B* **82** 020502
- [213] Hu H, Zuo J M, Wen J, Xu Z, Lin Z, Li Q, Gu G, Park W K, Greene L H 2011 *New J. Phys.* **13** 053031
- [214] He X, Li G, Zhang J, Karki A B, Jin R, Sales B C, Sefat A S, McGuire M A, Mandrus D, Plummer E W 2011 *Phys. Rev. B* **83** 220502
- [215] Taen T, Tsuchiya Y, Nakajima Y, Tamegai T 2009 *Phys. Rev. B* **80** 092502
- [216] Noji T, Suzuki T, Abe H, Adachi T, Kato M, Koike Y 2010 *J. Phys. Soc. Jpn.* **79** 084711
- [217] Yeh K W, Ke C T, Huang T W, Chen T K, Huang Y L, Wu P M, Wu M K 2009 *Cryst. Growth Des.* **9** 4847
- [218] Mizuguchi Y, Deguchi K, Kawasaki Y, Ozaki T, Nagao M, Tsuda S, Yamaguchi T, Takano Y 2011 *J. Appl. Phys.* **109** 013914
- [219] Hu R, Lei H, Abeykoon M, Bozin E S, Billinge S J L, Warren J B, Siegrist T, Petrovic C 2011 *Phys. Rev. B* **83** 224502
- [220] Huynh K K, Tanabe Y, Urata T, Oguro H, Heguri S, Watanabe K, Tanigaki K 2014 *Phys. Rev. B* **90** 144516

SPECIAL ISSUE—Celebrating 100 anniversary of physical science in Nanjing University

Magnetic neutron scattering studies on the Fe-based superconductor system $\text{Fe}_{1+y}\text{Te}_{1-x}\text{Se}_x$ *

Li Shi-Chao Gan Yuan Wang Jing-Hui Ran Ke-Jing Wen Jin-Sheng†

(Center for Superconducting Physics and Materials, National Laboratory of Solid State Microstructures, Department of Physics, and Collaborative Innovation Center of Advanced Microstructures, Nanjing University, Nanjing 210093, China)

(Received 28 January 2015; revised manuscript received 28 February 2015)

Abstract

We present a brief overview on the interplay between magnetism and superconductivity in one of the Fe-based superconductor systems, $\text{Fe}_{1+y}\text{Te}_{1-x}\text{Se}_x$. The parent compound Fe_{1+y}Te is an antiferromagnet; with Se doping, antiferromagnetic order is suppressed, followed by the appearance of superconductivity; optimal superconductivity is achieved when $x \sim 50\%$, with a superconducting temperature T_c of ~ 15 K. The parent compound has an in-plane magnetic ordering wave vector around $(0.5, 0)$ (using the tetragonal notation with two Fe atoms per cell). As Se concentration increases, the spectral weight appears to shift to the wave vector around $(0.5, 0.5)$, accompanying the optimization of superconductivity. A neutron-spin resonance is observed around $(0.5, 0.5)$ below T_c , and is suppressed, along with superconductivity, by an external magnetic field. Taking these evidences into account, we conclude that magnetism and superconductivity in this system couple to each other closely—while the static magnetic order around $(0.5, 0)$ competes with superconductivity, the spin excitations around $(0.5, 0.5)$ may be an important ingredient for it. We also discuss the nature of magnetism and substitution effects of 3d transition metals.

Keywords: Fe-based superconductors, neutron scattering, magnetic order, spin excitations

PACS: 75.30.Fv, 61.05.fg, 74.70.Xa, 75.25.-j

DOI: [10.7498/aps.64.097503](https://doi.org/10.7498/aps.64.097503)

* Project supported by National Natural Science Foundation of China (Grant No. 11374143), Ministry of Education (Grant No. NCET-13-0282), and Fundamental Research Funds for the Central Universities.

† Corresponding author. E-mail: jwen@nju.edu.cn