自旋关联对 Ba(Fe_{1-x}Co_x)₂As 电阻率和微波吸收的影响 $_2$

Yu. I. Talanov,^{*} I. I. Gimazov, and D. E. Zhelezniakova Zavoisky Physical-Technical Institute 420029, Kazan, Russia

关于钴掺杂的 BaFe₂As₂ 单晶的研究结果通过电阻率和微波吸收测量方法进行了报道。在考虑电阻 率、磁化率以及自旋涨落寿命随温度变化的情况下,对微波吸收幅度的行为进行理论描述。假设在 *T* < 100K 时电阻率与温度的线性依赖关系的偏离不是由于电子-电子散射机制引起的,而是由于出现斜方 相波动所致。通过估算由自旋涨落导致的散射速率表明,在接近结构转变的温度下它们具有斜方相性 质。

I. 介绍

自旋关联主要被视为在铁基超导体,特别是铁砷化物化合物中自由电子结合成库珀对并形成超导态时的介质候选者。这一陈述的重要原因是它们决定了许多物理参数的行为,特别是在超导转变温度以上的电阻随温度变化的关系 $T > T_c$ (参见例如 [1–4])。在几篇理论论文 [5–8] 中表明,实验观察到的电阻率与温度的线性关系 $\rho(T) \propto T$ (而不是费米液体中准粒子散射特征的二次方关系 $\rho(T) \propto T^2$)是由于它们仅由自旋涨落引起的散射的结果。由于反铁磁自旋关联具有高度各向异性的序参量,对应于自旋密度波 (SDW)形式的有序状态,因此 在接近过渡到 SDW 相的温度区域 T_N 以及其上方的织构波动时会刺激织构顺序的确立 (见参考文献 [9] 及其中 引用)。后者在磁性测量和电导率中都有体现,这种表现贯穿广泛的温度范围,一直延伸到 T_N 上几十开尔文的 温度。有一种说法是,斜方晶相涨落触发了从对称四角晶体结构 C4 到具有各向异性正交晶体结构和 C2 对称性 [10,11] 的结构转变。这种转变发生在温度降低到 $T = T_s$ 时,这比磁相变 T_N 高几度。

此外,一些作者指出传输特性(特别是自旋涨落对载流子散射率的贡献)与超导参数(如临界温度 T_c 和序 参量的对称性 [3])之间的联系。在研究不同因素对散射过程的影响时,估计并比较不同类型中心的散射率非常 重要:缺陷 (τ_d^{-1}) 、杂质 (τ_{imp}^{-1}) 、声子 (τ_{ph}^{-1}) 、自旋涨落 (τ_{sf}^{-1}) 、等。总速率 (τ_{total}^{-1}) 的值可以通过测量材料对直 流电的电阻的结果来确定。为了评估自旋涨落贡献,需要研究对频率为 ω 的交变电磁场的响应,该频率与自旋 涨落散射率 τ_{sf}^{-1} 相当。为此,在这项工作中我们采用了记录微波吸收的方法,其频率为~10¹⁰Hz。

II. 实验方法和技术

根据经典的德鲁德理论,具有金属导电性的材料的电阻率由其少量物理参数决定:

$$\rho = \frac{m^*}{e^2 n} \tau^{-1} \tag{1}$$

其中 m^* 、e和n分别是有效质量、电荷和电流载体(电子或空穴)的浓度。散射率 τ^{-1} 包括几个贡献(如上所述):(i)缺陷和杂质的散射 τ_d^{-1} ;(ii)费米液体准粒子相互作用(碰撞)时的"电子-电子散射" τ_e^{-1} ;(iii)磁性(自旋)涨落的散射 τ_{sf}^{-1} ,如果材料具有相互作用的磁矩。还可能存在其他散射过程,但在我们研究的化合物中,只有上述列出的过程起作用。由于电阻率对温度的依赖主要由散射率的变化决定,因此可以用三项之和来描述: $\rho(T) = \rho_o + \rho_e(T) + \rho_{sf}(T)$ 。第一项 ρ_o ,由于杂质和缺陷引起的散射,不随温度变化,并确定在T = 0处的

^{*} talanov@kfti.knc.ru

剩余电阻率。最后两项, ρ_e (由于电子-电子散射) 和 ρ_{sf} (由于自旋涨落散射) 的温度依赖性具有不同的形式: $\rho_e(T) \propto T^2$ [12], 而 $\rho_{sf}(T) \propto T$ [5, 7, 8]。一般来说,电阻率的温度依赖性具有如下形式:

$$\rho(T) = \rho_o + A_1 T + A_2 T^2 \tag{2}$$

因此,通过分析所研究样品的电阻率随温度变化的实验数据,可以确定哪种散射机制占主导地位。此外,知道有效质量和载流子浓度后,可以使用方程(1)估算总耗散率 τ^{-1} 。

在本研究中,从4到300 K 范围内的 R(T) 测量结果确定了电阻率 $\rho(T)$ 的温度依赖性特征。使用标准四探 针方法在约1毫安恒定电流下进行了电阻测量。电流和电位接触通过银导电膏附着在晶体的 ab 平面上。这样, 就测定了纵向电阻分量 R_{ab} ,并考虑了晶体尺寸将其转换为电阻率 ρ 。

为了记录微波吸收(MWA),我们使用了 Bruker 生产的标准 BER-418s 分光计,在约 9.5 GHz 的频率下运行。在样品放入分光计腔体的情况下,测量了从 4.2 K 到 200 K 温度范围内的微波损耗幅度 A_{mwa}。

已知在导电材料中, 微波的吸收发生在皮肤层。因此, 在趋肤深度 δ 远大于电子平均自由程 l_e [13] 的情况 下, MWA 的振幅与皮肤层的体积成正比。相应地,随着温度降低导致的趋肤深度 δ 的变化,将引起微波吸收信 号 A_{mwa} 的振幅随温度变化。由于穿透深度由电阻率 ρ 通过方程 $\delta = c\sqrt{\frac{\rho}{2\pi\omega\mu_0}}$ 确定(这里 c 是光速, ω 是频率, μ_0 是真空的磁导率),因此得出 $A_{mwa} \propto \sqrt{\rho}$ 。这指的是欧姆损耗对微波吸收的贡献。此外, MWA 振幅还受到与 静态磁化率 χ_0 成正比的磁损耗的影响。他们的贡献取决于测量频率 ω 和自旋散射率的比例,这大约等于 τ_{sf}^{-1} 。 考虑到所有这些因素,微波吸收振幅的形式为:

$$A_{mwa}(T) = \sqrt{\frac{\mu_0 \omega_0}{2}} \sqrt{\rho(T)} \left(1 + \frac{1}{2} (\chi'(T) - \chi''(T)) \right)$$
(3)

其中磁化率的实部 Ҳ'和虚部 Ҳ"成分通过以下公式表示:

$$\chi' = \chi_0 \frac{1}{1 + (\omega \tau_{sf})^2}$$
(4)

$$\chi'' = \chi_0 \frac{\omega \tau_{sf}}{1 + (\omega \tau_{sf})^2} \tag{5}$$

方程(3)是通过类比 S. Barnes 描述含有磁性杂质的金属样品自旋共振的方法得到的。[14]。

使用直流电阻率和微波吸收的测量方法,我们研究了自旋涨落对不同钴浓度的 BaFe₂As₂ 晶体中电流载流子 散射的影响。晶体生长的方法在文章 [15] 中有详细描述,它们的输运和磁性性质见文献 [15, 16]。

III. 结果与讨论

我们将使用下面获得的两种 Ba(Fe_{1-x}Co_x)₂As₂ 晶体在 x = 0.05 (欠掺杂)和 x = 0.075 (过掺杂)下的直 流电阻率和微波吸收的温度依赖性,来展示它们的特点并进行分析。

电阻率与温度的关系如图 1所示,样本为 Ba(Fe_{0.95}Co_{0.05})₂As₂。这种依赖关系具有所有晶体 Ba(Fe_{1-x}Co_x)₂As₂的特征,其中钴杂质浓度低于最优值,x < 0.07 [1–4,17]。即:在区间 $T_s < T < 300$ K 内具有正斜率的金属态运行,呈线性依赖 $\rho(T) \propto T$,在T > 115K 处,接近结构转变点 $T_s \approx 75$ K 时偏离线性,随着温度降低。当达到 T_s 时,电阻出现急剧上升,之后略有变化,然后在转变为超导态的 $T = T_c$ 时急剧降至 0。通常认为, $\rho(T)$ 依赖性由方程(2) 描述,其线性部分是由于载流子被自旋涨落[1–3,7,17] 散射引起的。自旋涨落的存在及其对铁基砷化物输运和磁性质的影响已被许多实验方法证实,包括非弹性中子散射(INS)[18–20] 和核磁共振(NMR)[16,17,21,22]。特别是,它们决定了磁化率温度依赖性的异常形式: $\chi_0(T) \propto T$ 而不是居里-外斯定律。这种依赖形式是由于铁



图 1. 电阻率与温度的关系图 (菱形表示) Ba(Fe_{0.95}Co_{0.05})₂As₂ 晶体。虚直线是根据高温下获得的实验点绘制的, T > 115K。红 线是方程 2在 75K 到 300K 温度范围内数据点的拟合。

离子在 FeAs 层中的磁矩之间的交换相互作用 J_1 即使温度降至低于 $\Theta(k_B \Theta \approx J_1 = 43 \text{meV}[19])$ 也不会导致长程 磁有序。这是因为在低维系统中禁止这样的排序(Mermin-Wagner 定理 [23]), Ba(Fe_{1-x}Co_x)₂As₂ 中的 FeAs 层 由于层间的弱连接 J_{\perp} 而呈准二维。同时,足够强的反铁磁关联导致单态配对的形成,并且随着温度降低磁化率 下降 [24-26]。

根据流行的观点,在低温 (T < 100K)下,电子-电子散射机制比自旋涨落散射更有效,且 $\rho(T)$ 依赖性变为二次的 [3, 5, 27]。这种转变的原因尚不完全清楚,并对其正确性存在疑问。在这里我们提出另一种解释低温下 $\rho(T)$ 依赖性行为的想法。

在我们看来,将偏离线性的现象与近晶相涨落的影响联系起来更为自然。事实上,决定电阻率值的磁涨落 具有高度各向异性的条纹型序参数。因此,对于两个晶体学方向($a \ \pi b$)上的散射率非常不同: $\rho^b > \rho^a$ 。该效 应的理论描述见参考文献。[8]。这通过测量在单轴压缩(拉伸)作用下的 Ba(Fe_{1-x}Co_x)₂As₂ 晶体在两个方向, $\rho^a \ \pi \rho^b$,的电阻率得到了实验验证,这导致了它们的解倍化[28,29]。因此,依赖关系 $\rho^a(T) \ \pi \rho^b(T)$ 在 $T < T_s$ 和 $T > T_s$ 处都非常不同,并且出现电阻率各向异性的温度比 T_N 和 T_s 高出几十度。在这种情况下, $\rho^a(T)$ 在温 度几乎降至超导转变点 T_c 时保持近乎线性,而 $\rho^b(T)$ 随着条纹状波动的出现偏离了线性,并在接近 T_N 的温度 时表现出上升趋势。对于未经历单轴压缩的孪晶晶体, $\rho(T)$ 表现为介于 $\rho^a(T)$ 和 $\rho^b(T)之间的情况,也就是说,$ $所有的非线性偏离也同样发生。它们并不像<math>\rho^b(T)$ 那样大,但在斜方相涨落效应的程度上与之相当。因此, $\rho(T)$ 的行为可以通过斜方相(各向异性磁性)涨落的影响来很好地解释,而无需假设过渡到费米液体状态。

如上所述,微波吸收数据提供了关于波动的额外信息。Ba(Fe_{0.95}Co_{0.05})₂As₂ 样品的 MWA 振幅随温度的变 化如图 2所示,包括了 $\rho(T)$ 。为了分析 $A_{MWA}(T)$ 的行为,使用方程 (3) 以及定义 (4) 和 (5)。这样做,我们假设 $\rho(T)$ 和 $\chi_0(T)$ 存在线性依赖关系。散射率的温度依赖性采用参考文献中提出的公式: [3]:

$$\tau^{-1}(T) = \frac{a \cdot T}{(T + \Theta)^{1/2}} + b \cdot T^2, \tag{6}$$



图 2. 温度依赖的 MWA 振幅(红色菱形)和电阻率(蓝色曲线)的 Ba(Fe_{0.95}Co_{0.05})₂As₂ 晶体。黑色实线是方程 3对 70 K 到 200 K 温度范围内 MWA 数据点的拟合。

其中 $\Theta \approx \frac{J}{k_B} \approx 500$ K 是磁有序在 *ab* 平面中未出现的平均场温度(由于上述原因)(J_1 的值取自参考文献。)[19] 方程(6)右侧的第一项与自旋涨落引起的散射有关,第二项描述了电子-电子散射。拟合结果如图 2所示的黑色 实线曲线。请注意,在不限制参数的情况下进行计算时,参数 *b* 的值总是比 *a* 小几个数量级,并且如果我们取 b = 0,则计算出的曲线几乎不会发生变化。这表明,尽管 $A_{MWA}(T)$ 依赖性是非线性的,但没有必要引入费米 液体散射机制来描述铁基 pnictides 的欧姆损耗和微波吸收。 τ^{-1} 的大小将在下面讨论。

钴浓度增加到超过最优值(x > 0.07)时,晶体 Ba(Fe_{1-x}Co_x)₂As₂的电阻率和微波吸收随温度变化的关系将在下面通过 Ba(Fe_{0.925}Co_{0.075})₂As₂样品的例子进行考虑。根据相图 [1,15],这种成分的样品既不会发生结构转变也不会出现磁有序。图 3 所示为此样品获得的依赖关系 $\rho(T)$ 和 $A_{MWA}(T)$,这些结果很好地符合这一陈述。两条曲线上都没有因结构或磁态变化而产生的特征。仅当样品过渡到超导状态时,数值才会急剧下降(电阻率情况下降至 0), $T_c = 24$ K。 $\rho(T)$ 具有一个相当长的线性部分,100÷300K,并在 T = 43K 时出现回升。 $A_{MWA}(T)$ 在整个测量温度范围内,从 T_c 到 165 K,是非线性的。使用方程(3)及其参数由公式(4-6)定义来计算这种依赖关系的结果如图 3中的黑线所示。

所研究化合物的一个最重要参数,它决定了电阻率(公式 1)和微波吸收(公式 3)的值和行为,是散射率 τ^{-1} (或散射时间 τ)。通过拟合理论依赖关系 $A_{MWA}(T)$ (公式 (3)与实验数据的关系如下: τ^{-1} 随着温度从 75 K 到 185 K 的增加,从 2.1 · 10¹⁰ s⁻¹ 变化到 6.3 · 10¹⁰ s⁻¹,在样品 Ba(Fe_{0.95}Co_{0.05})₂As₂中。并且它从 2 · 10¹⁰ 秒 ⁻¹ 变化到 1.5 · 10¹¹ 秒⁻¹,在 $T = 60 \div 185$ K 时对于 Ba(Fe_{0.925}Co_{0.075})₂As₂ 样品。获得的散射率值显著低于基于 直流输运测量并在文献中给出的类似样品的估计值: 3 · 10¹³ s⁻¹在 300 K[27]和 3.5 · 10¹² s⁻¹在 100 K[30]。这种 差异可以通过考虑输运测量数据的估计给出了由所有机制(包括杂质机制)决定的总耗散率 τ^{-1} 来理解。并且 从 MWA 拟合中获得的值仅与自旋涨落引起的散射有关, τ_{sf}^{-1} 。这一解释与超快时间分辨偏振测量的结果一致, [31],该结果揭示了由圆偏振光飞秒脉冲激发的 Ba(Fe_{1-x}Co_x)₂As₂自旋系统的两步恢复。在第一步中,电荷在 激发脉冲后 10⁻¹³秒内迅速热化。第二步是通过标度波动在 10⁻¹¹ - 10⁻¹⁰秒的时间范围内缓慢恢复。可以看出, 从 $A_{MWA}(T)$ 分析中获得的 τ_{sf}^{-1} 值对应于自旋系统弛豫的第二阶段。



图 3. 电阻率(蓝色实线)和 Ba(Fe_{0.925}Co_{0.075})₂As₂ 晶体的 MWA 振幅(红色圆圈)随温度的变化。黑色实线是方程 3在 60 K 到 165 K 温度范围内对 MWA 数据的拟合。绘制一条虚直线以显示 $\rho(T)$ 的线性部分。

IV. 结论

为了澄清当前载流子散射的哪些机制决定了晶体 Ba(Fe_{1-x}Co_x)₂As₂ 中电阻和微波吸收的大小和行为, 我们 分析了钴浓度为 x = 0.05 和 0.075 的样品的温度依赖性 $\rho(T)$ 和 $A_{MWA}(T)$ 。分析结果使我们得出结论, $\rho(T)$ 依 赖性在 $T \leq 100$ K 时偏离线性行为并非与过渡到具有 $\rho(T) \propto T^2$ 的费米液体状态有关, 而是由于出现的斜方波 动。通过描述 MWA 振幅的温度依赖性所确定的自旋波动 τ_{sf}^{-1} 散射率表明, 随着温度降低至 SDW 有序点, 它们 呈现出斜方特性。

- N. Ni, M. E. Tillman, J. Q. Yan, A. Kracher, S. T. Hannahs, S. L. Bud'ko, and P. C. Canfield, Physical Review B -Condensed Matter and Materials Physics 78, 214515 (2008).
- [2] X. F. Wang, T. Wu, G. Wu, H. Chen, Y. L. Xie, J. J. Ying, Y. J. Yan, R. H. Liu, and X. H. Chen, Physical Review Letters 102, 117005 (2009).
- [3] N. Doiron-Leyraud, P. Auban-Senzier, S. R. D. Cotret, C. Bourbonnais, D. Jérome, K. Bechgaard, and L. Taillefer, Physical Review B - Condensed Matter and Materials Physics 80, 214531 (2009).
- [4] M. Nakajima, S. Ishida, T. Tanaka, K. Kihou, Y. Tomioka, T. Saito, C. H. Lee, H. Fukazawa, Y. Kohori, T. Kakeshita, A. Iyo, T. Ito, H. Eisaki, and S. Uchida, Scientific Reports 4, 5873 (2014).
- [5] T. Moriya, Y. Takahashi, and K. Ueda, Journal of the Physical Society of Japan 59, 2905 (1990).
- [6] R. Hlubina and T. M. Rice, Physical Review B 51, 9253 (1995).
- [7] A. F. Kemper, M. M. Korshunov, T. P. Devereaux, J. N. Fry, H. P. Cheng, and P. J. Hirschfeld, Physical Review B -Condensed Matter and Materials Physics 83, 184516 (2011).
- [8] R. M. Fernandes, E. Abrahams, and J. Schmalian, Physical Review Letters 107, 217002 (2011).
- [9] A. E. Böhmer, J. H. Chu, S. Lederer, and M. Yi, Nature Physics 18, 1412 (2022).

- [10] S. Nandi, M. G. Kim, A. Kreyssig, R. M. Fernandes, D. K. Pratt, A. Thaler, N. Ni, S. L. Bud'Ko, P. C. Canfield, J. Schmalian, R. J. McQueeney, and A. I. Goldman, Physical Review Letters 104, 057006 (2010).
- [11] R. M. Fernandes, L. H. Vanbebber, S. Bhattacharya, P. Chandra, V. Keppens, D. Mandrus, M. A. McGuire, B. C. Sales, A. S. Sefat, and J. Schmalian, Physical Review Letters 105, 57003 (2010).
- [12] A. Abrikosov, Fundamentals of the Theory of Metals (Dover Publications, 2017).
- [13] O. Klein, S. Donovan, M. Dressel, and G. Grüner, International Journal of Infrared and Millimeter Waves 14, 2423 (1993).
- [14] S. Barnes, Advances in Physics **30**, 801 (1981).
- [15] S. Aswartham, C. Nacke, G. Friemel, N. Leps, S. Wurmehl, N. Wizent, C. Hess, R. Klingeler, G. Behr, S. Singh, and B. Bchner, Journal of Crystal Growth 314, 341 (2011).
- [16] H. J. Grafe, U. Gräfe, A. P. Dioguardi, N. J. Curro, S. Aswartham, S. Wurmehl, and B. Büchner, Physical Review B -Condensed Matter and Materials Physics 90, 094519 (2014).
- [17] F. Ning, K. Ahilan, T. Imai, A. S. Sefat, R. Jin, M. A. McGuire, B. C. Sales, and D. Mandrus, Journal of the Physical Society of Japan 78, 013711 (2009).
- [18] K. Matan, S. Ibuka, R. Morinaga, S. Chi, J. W. Lynn, A. D. Christianson, M. D. Lumsden, and T. J. Sato, Physical Review B - Condensed Matter and Materials Physics 82, 10.1103/PhysRevB.82.054515 (2010).
- [19] C. Lester, J. H. Chu, J. G. Analytis, T. G. Perring, I. R. Fisher, and S. M. Hayden, Physical Review B Condensed Matter and Materials Physics 81, 064505 (2010).
- [20] M. Wang, C. Zhang, X. Lu, G. Tan, H. Luo, Y. Song, M. Wang, X. Zhang, E. A. Goremychkin, T. G. Perring, T. A. Maier, Z. Yin, K. Haule, G. Kotliar, and P. Dai, Nature Communications 4, 2874 (2013).
- [21] F. L. Ning, K. Ahilan, T. Imai, A. S. Sefat, M. A. McGuire, B. C. Sales, D. Mandrus, P. Cheng, B. Shen, and H. H. Wen, Physical Review Letters 104, 037001 (2010).
- [22] A. P. Dioguardi, M. M. Lawson, B. T. Bush, J. Crocker, K. R. Shirer, D. M. Nisson, T. Kissikov, S. Ran, S. L. Bud'Ko, P. C. Canfield, S. Yuan, P. L. Kuhns, A. P. Reyes, H. J. Grafe, and N. J. Curro, Physical Review B - Condensed Matter and Materials Physics 92, 165116 (2015).
- [23] B. I. Halperin, Journal of Statistical Physics 175, 521 (2019).
- [24] M. M. Korshunov, I. Eremin, D. V. Efremov, D. L. Maslov, and A. V. Chubukov, Physical Review Letters 102, 236403 (2009).
- [25] G. M. Zhang, Y. H. Su, Z. Y. Lu, Z. Y. Weng, D. H. Lee, and T. Xiang, EPL 86, 37006 (2009).
- [26] L. Harnagea, S. Singh, G. Friemel, N. Leps, D. Bombor, M. Abdel-Hafiez, A. U. Wolter, C. Hess, R. Klingeler, G. Behr, S. Wurmehl, and B. Büchner, Physical Review B - Condensed Matter and Materials Physics 83, 094523 (2011).
- [27] N. Barišić, D. Wu, M. Dressel, L. J. Li, G. H. Cao, and Z. A. Xu, Physical Review B Condensed Matter and Materials Physics 82, 054518 (2010).
- [28] J. J. Ying, X. F. Wang, T. Wu, Z. J. Xiang, R. H. Liu, Y. J. Yan, A. F. Wang, M. Zhang, G. J. Ye, P. Cheng, J. P. Hu, and X. H. Chen, Physical Review Letters 107, 067001 (2011).
- [29] S. Ishida, M. Nakajima, T. Liang, K. Kihou, C. H. Lee, A. Iyo, H. Eisaki, T. Kakeshita, Y. Tomioka, T. Ito, and S. Uchida, Physical Review Letters 110, 207001 (2013).
- [30] F. Rullier-Albenque, D. Colson, A. Forget, and H. Alloul, Physical Review Letters 103, 057001 (2009).
- [31] A. Patz, T. Li, S. Ran, R. M. Fernandes, J. Schmalian, S. L. Bud'Ko, P. C. Canfield, I. E. Perakis, and J. Wang, Nature Communications 5, 3229 (2014).