

# Ru 掺杂 $\text{BaFe}_2\text{As}_2$ 体系 $\text{Ba}(\text{Fe}_{1-x}\text{Ru}_x)_2\text{As}_2$ 的面内电输运性质演化研究

吴大鹏<sup>1,2</sup>, 李 宁<sup>1</sup>, 翟莹莹<sup>2</sup>, 于华明<sup>1</sup>, 玉 姣<sup>1</sup>

(1. 辽宁石油化工大学, 辽宁 抚顺 113001)

(2. 东北大学, 辽宁 沈阳 110004)

**摘 要:** 纵向磁阻能够反映铁砷化合物中载流子和自旋自由度间相互作用, 为利用其对等价掺杂铁砷化合物的输运性质和自旋磁涨落进行研究, 采用高温助熔剂法制备了高质量的  $\text{Ba}(\text{Fe}_{1-x}\text{Ru}_x)_2\text{As}_2$  单晶样品, 测量了其中超导样品的  $ab$  面内纵向磁阻。发现外场  $H$  作用下电阻值降低且磁阻大小随  $H^2$  线性增大, 分析表明负的纵向磁阻源于磁场对体系自旋涨落的压制效应; 随着 Ru 掺杂量  $x$  增加, 纵向磁阻系数曲线逐步下移, 说明欠掺杂样品中自旋涨落较为剧烈, 曲线下移反映了掺杂对体系内反铁磁自旋涨落的压制过程; 应用二维反铁磁金属巡游电子模型对纵向磁阻的定性分析发现: 随 Ru 掺杂量增加, 模式耦合系数在最佳掺杂量子临界点处形式发生改变, 说明伴随体系长程反铁磁序完全被压制, 最佳掺杂和过掺杂样品内载流子与自旋涨落的作用方式产生了变化。

**关键词:** 铁砷化合物; 纵向磁阻; 巡游电子; 自旋涨落

中图分类号: O614.82; O441.6

文献标识码: A

文章编号: 1002-185X(2020)01-0193-08

随着现代凝聚态物理学发展, 越来越多证据表明传统电一声子相互作用理论很难解释非常规超导体系, 如高温超导体和重费米子超导体。在这些体系中, 超导都发生在反铁磁(AFM)或铁磁(FM)不稳定区域的边缘, 超导和磁序共存说明磁涨落在超导电子成对机制中扮演重要角色<sup>[1-3]</sup>。一般认为,  $\text{BaFe}_2\text{As}_2$  ( $\text{Ba-122}$ ) 第一布里渊区空穴费米面和电子费米面间的嵌套效应促成了其反铁磁自旋密度波(AFM SDW)序, 嵌套间平移波矢量为  $Q_{\text{AF}}$ , 自旋磁化率在  $Q_{\text{AF}}$  上达到峰值。嵌套强弱和  $Q_{\text{AF}}$  可通过掺杂或施压加以改变, 进而诱发自旋涨落并促成超导<sup>[4]</sup>。人们用各种测试手段对此进行过研究: 非弹性中子散射(INS)在多种铁砷超导体中检测到自旋激发效应<sup>[5-7]</sup>; 核磁共振(NMR)实验发现低温区的自旋—晶格弛豫率急剧增大, 说明随温度降低, AFM 自旋涨落迅速增强<sup>[8,9]</sup>。

然而研究铁砷化合物磁机制对输运性质的影响仍存在不少困难, 一方面来源于该类化合物的多能带效应, 使从电阻率中提取出散射率对温度的依赖关系十分不易; 更重要的是掺杂往往非线性地改变着体系的载流子浓度<sup>[10]</sup>, 使自旋涨落和载流子相互作用关系更加复杂化。Ru 作为化学元素周期表上与Fe同列的过渡金属, 是唯一一种可实现对Fe同价掺杂的 4d 元素。Ru掺杂不向晶体能带释放多余电子又能通过引入化学压力抑制体系AFM SDW转变实现超导, 使Ru在铁

砷化合物输运性质研究中, 与其它异价离子相比具有独特优势<sup>[11,12]</sup>。

本研究制备了一系列高质量 Ru 掺杂  $\text{Ba-122}$  单晶样品  $\text{Ba}(\text{Fe}_{1-x}\text{Ru}_x)_2\text{As}_2$ , 测试其电输运性质后绘出体系相图, 再测量其中超导样品的纵向磁阻( $H // I //$  样品  $ab$  面), 由于外场  $H$  严格平行于样品  $ab$  面和面内电流  $I$ , 因此准二维铁砷化合物中的磁—轨耦合效应<sup>[13]</sup>和磁场对电流  $I$  的影响均可忽略不计, 这时纵向磁阻完全源自和反应体系内的自旋散射效应, 从而利于探究并阐明铁砷化合物中磁涨落与载流子的相互作用关系。

## 1 实 验

$\text{Ba}(\text{Fe}_{1-x}\text{Ru}_x)_2\text{As}_2$  单晶样品采用 FeAs/RuAs 助熔剂法制备<sup>[14]</sup>, 分两步进行: 首先合成前驱物 FeAs 和 RuAs, 将高纯度 Fe 粉(99.95% Alfa Aesar)或 Ru 粉(99.99% Alfa Aesar)与 As 粉(99.999% Alfa Aesar)等摩尔混合均匀放入  $\text{Al}_2\text{O}_3$  坩埚后封装于石英管, 石英管内充注  $1/3 \times 10^5$  Pa Ar 气, 经 5 h 加热至 800 °C 并在 800 °C 保温 24 h 再降至室温; 第 2 步将 Ba 粒(99.9% Alfa Aesar)、FeAs 和 RuAs 粉末以 Ba:FeAs:RuAs = 1:4 (1-x):4x 比例混合装入  $\text{Al}_2\text{O}_3$  坩埚, 再将另一底部垫有石英棉的略大内径坩埚倒扣在  $\text{Al}_2\text{O}_3$  坩埚上整体封装入石英管, 石英管内注入约  $1/4 \times 10^5$  Pa Ar 气, 在箱式炉内经 10 h 加热到 1180 °C 并保温 20 h 后, 以

收稿日期: 2019-01-22

基金项目: 辽宁石油化工大学基金(2018XJJ-001); “十三五”国家重点研发计划(2017YFB0304200); 东北大学基金(N171603015)

作者简介: 吴大鹏, 男, 1980 年生, 博士, 辽宁石油化工大学理学院, 辽宁 抚顺 113001, 电话: 024-56863803, E-mail: wudapeng@lnpu.edu.cn

2 °C/h 缓慢降温至 1050 °C 关闭电源，倒置石英管，使多余液态 FeAs/RuAs 助熔剂流出浸入石英棉，随炉冷却到室温打破石英管分开两坩埚后，即可在石英棉上和 Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 坩埚底部得到晶体样品。

Ba(Fe<sub>1-x</sub>Ru<sub>x</sub>)<sub>2</sub>As<sub>2</sub> 晶体表面形貌使用扫描电子显微镜(SEM)观察。实际化学组分由能量色散谱(EDS)确定，首先在样品表面 5 个不同位置选点测量，得到各元素组分平均值，再由 Ru/(Fe+Ru)计算出 Ru 实际掺杂量 *x*。样品相纯度和晶体结构经室温 X 射线衍射分析确认，采用 Rigaku-D/max-A (Cu-Kα) 型 XRD 仪 (λ=0.154 056 nm)，角度扫描范围 5°≤2θ≤80°。X 射线衍射分析、组分测定和物理性能测试使用的晶体样品取自同一批次。Ba(Fe<sub>1-x</sub>Ru<sub>x</sub>)<sub>2</sub>As<sub>2</sub> 单晶样品的输运性质在综合物性测量系统中进行，测量方法采用标准四引线技术，四引线电极使用优质银胶（银胶型号 EPO-TEK, EE129-4)将细 Pt 线粘接在样品表面，电压电极触点间距<1 mm，样品厚度小于 20 μm；外场下电阻测量先设定温度，待样品到达预设温度且温度稳定后，在磁场从-14 T 逐步变化至 14 T 过程中采集数据，电阻值通过公式  $MR(H) = [MR(+H)+MR(-H)]/2$  得到以消除测量误差。

## 2 结果和讨论

### 2.1 掺杂对 BaFe<sub>2</sub>As<sub>2</sub> 晶体结构的影响

Ru 掺杂 Ba-122 单晶样品典型大小 3 mm×3 mm，呈光滑灰黑色片层状。图 1 是晶体样品的 SEM 照片，可见样品表面形貌平坦，层理结构明显。

Ba(Fe<sub>1-x</sub>Ru<sub>x</sub>)<sub>2</sub>As<sub>2</sub> 样品实际化学组分由 EDS 能谱分析结果确定。图 2 为 Ru 名义掺杂量 *x* = 0.3 样品的 EDS 谱线，图中标出了各峰位所代表的特定原子，可

见样品中不含除 Ba、Fe、Ru、As 外其它任何元素，报告结果显示其实际 Ru 含量 *x* = 0.304，其它样品的名义和实际掺杂量同列于表 1，以下分析讨论均基于实际组分。

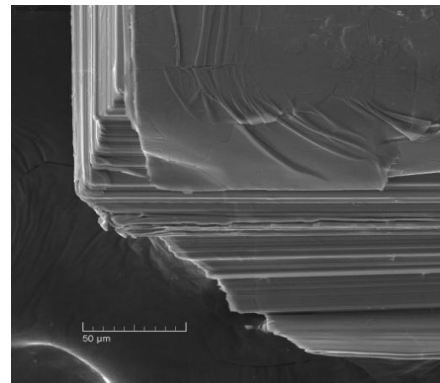


图 1 Ba(Fe<sub>1-x</sub>Ru<sub>x</sub>)<sub>2</sub>As<sub>2</sub> 晶体的 SEM 照片  
Fig.1 SEM image of Ba(Fe<sub>1-x</sub>Ru<sub>x</sub>)<sub>2</sub>As<sub>2</sub> crystal

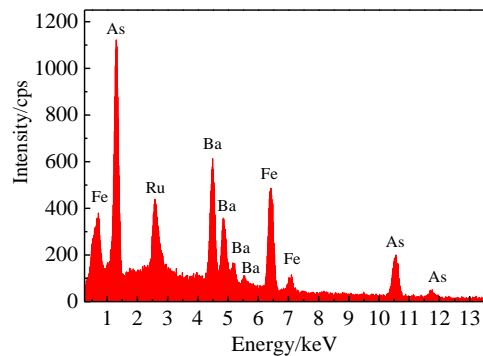


图 2 Ru 名义掺杂量 *x* = 0.3 样品的 EDS 能谱  
Fig.2 EDS spectrum of nominal *x* = 0.3 Ru doped crystal

表 1 Ru 名义掺杂量和 EDS 能谱确定的实际掺杂量及通过电阻曲线确定的长程 AFM SDW 转变温度(*T*<sub>SDW</sub>)和超导转变温度(*T*<sub>c</sub>)

Table 1 Nominal Ru concentration, the actual Ru concentration determined by EDS analysis, and critical temperature from resistive transition for the Ba(Fe<sub>1-x</sub>Ru<sub>x</sub>)<sub>2</sub>As<sub>2</sub> single crystals

Sample	Nominal doping/at%	Element composition/at%				Actual doping/at%	<i>T</i> <sub>SDW</sub> /K	<i>T</i> <sub>c</sub> /K
		Ba	Fe	Ru	As			
1	0	19.8	40.0	0	40.2	0.0	137.15	
2	7	20.3	36.9	2.8	40.0	7.1	112.43	
3	10	20.3	36.1	3.9	39.7	9.8	97.33	
4	16	19.7	33.9	6.3	40.1	15.7	66.70	
5	20	20.1	31.7	8.3	39.9	20.7	53.42	18.72
6	25	19.9	30.0	9.9	40.2	24.8	32.05	20.55
7	30	20.3	27.7	12.1	39.9	30.4		22.61
8	35	20.1	26.4	13.6	39.9	33.9		20.55
9	40	20.0	23.0	17.0	40.0	42.5		7.2

片层状 Ba(Fe<sub>1-x</sub>Ru<sub>x</sub>)<sub>2</sub>As<sub>2</sub> ( $x = 0, 0.071, 0.098, 0.157, 0.207, 0.248, 0.304, 0.339, 0.425$ ) 单晶样品的 X 射线衍射谱如图 3a。从中可见, 只有(00l)峰被明显观察到, 表明晶格  $c$  轴取向垂直于样品表面。衍射谱中未发现 FeAs、RuAs 及其它不纯净杂相, 且母相 Ba-122 峰位与之前文献[15]报道的符合良好。

为得到样品  $c$  轴晶格参数变化, 将(004)和(008)峰位附近放大(图 3b)。从中可见, 随 Ru 掺杂量增加, 两峰均向大角度偏移, 表明  $c$  轴晶格长度变小, 这与 Shilpam Sharma 等人的结果一致<sup>[11]</sup>。与 3d 金属 Fe 相比, 4d 金属 Ru 电子更加去局域化, 增强了与 As 电子轨道杂化, 造成 Fe/Ru-As 层负电荷密度增大和层间有效库伦引力增强, 引发晶格  $c$  轴长度缩短。另外, 具有较大离子半径的 Ru<sup>2+</sup> 取代 Fe<sup>2+</sup> 自然使得 Fe-Ru 平面扩张即  $a$  轴长度增加,  $a$  轴长度增加和  $c$  轴长度缩小将导致 As-(Fe,Ru)-As 夹角增大和 As 在 Fe/Ru 平面上高度降低<sup>[15]</sup>。

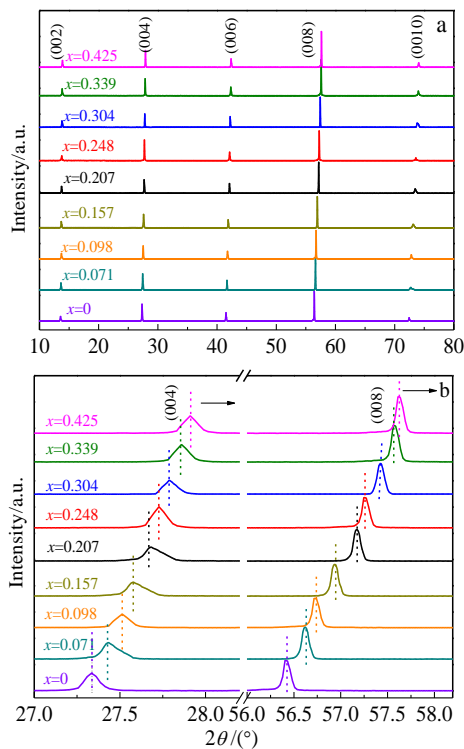


图 3 Ba(Fe<sub>1-x</sub>Ru<sub>x</sub>)<sub>2</sub>As<sub>2</sub> ( $x = 0, 0.071, 0.098, 0.157, 0.207, 0.248, 0.304, 0.339, 0.425$ ) 单晶样品 X 射线衍射图谱及(004)和(008)峰附近放大, 箭头指出峰位移动方向

Fig.3 X-ray diffraction pattern with index peaks of as prepared thin plate-like single crystal samples of Ba(Fe<sub>1-x</sub>Ru<sub>x</sub>)<sub>2</sub>As<sub>2</sub> ( $x = 0, 0.071, 0.098, 0.157, 0.207, 0.248, 0.304, 0.339, 0.425$ ) (a); enlargement around (004) and (008) peaks, the arrows indicate the orientation of the peak shifts (b)

## 2.2 掺杂 BaFe<sub>2</sub>As<sub>2</sub> 晶体样品的电阻率和体系相图

电阻率是材料电输运特性最直观的反应, 分别测量了 Ba(Fe<sub>1-x</sub>Ru<sub>x</sub>)<sub>2</sub>As<sub>2</sub> ( $x=0, 0.071, 0.098, 0.157, 0.207, 0.248, 0.304, 0.339, 0.425$ ) 单晶样品  $ab$  面电阻率随温度 ( $2 \leq T \leq 300$  K) 的变化关系, 并将归一化电阻率  $\rho(T)/\rho(300$  K) 曲线绘于图 4。从中可见, 母相 BaFe<sub>2</sub>As<sub>2</sub> 电阻率在  $T = 137$  K 迅速降低, 说明体系发生了长程 AFM SDW 一级相变<sup>[16,17]</sup>。随着 Ru 掺杂量  $x$  增加, 这种电阻率-温度( $\rho$ - $T$ )的相变反常逐步被压制, 磁相转变温度  $T_{SDW}$  向低温区移动, 转变形式也由最初电阻率在  $T_{SDW}$  点处锐利下降逐步变为平坦宽阔的缓慢上升, 当  $x = 0.157$  时样品出现超导转变迹象。

从图 4 中  $\rho$ - $T$  曲线簇可见以下特征: 超导转变温度范围  $\Delta T_c$  较宽, 这是压力导致超导出现的典型特征<sup>[18,19]</sup>。如根据 10%~90% 转变前正常态电阻率标准得到的 Ru 掺杂量  $x = 0.207$  样品的超导转变温度范围  $\Delta T_c = 6.63$  K, 而相近  $T_c$  的电子掺杂型 Ba(Fe<sub>0.962</sub>-Co<sub>0.038</sub>)<sub>2</sub>As<sub>2</sub> 的  $\Delta T_c$  为 3 K<sup>[20]</sup>; 当  $x < 0.3$  时, Ru 掺杂 Ba-122 样品中磁序与超导相明显共存。根据 Ma Long 的 <sup>75</sup>As 同位素 NMR 实验结果, 欠掺杂 Ba(Fe<sub>1-x</sub>Ru<sub>x</sub>)<sub>2</sub>As<sub>2</sub> 体系中磁相和超导在纳米级空间区域共存并在同一 Fermi 面上竞争, 说明自旋涨落对该体系超导出现的重要性<sup>[21]</sup>; 当 Ru 掺杂量  $x = 0.304$  时, 样品正常态  $\rho$ - $T$  成线性关系, SDW 转变消失, 长程 AFM 序完全被压制。与 Cu 基<sup>[22]</sup>及其它 Fe 基高温超导体<sup>[23,24]</sup>相似, Ru 最佳掺杂 Ba-122 样品从室温持续至超导转变前的线性  $\rho$ - $T$  关系说明体系具有量子临界点, 这一现象

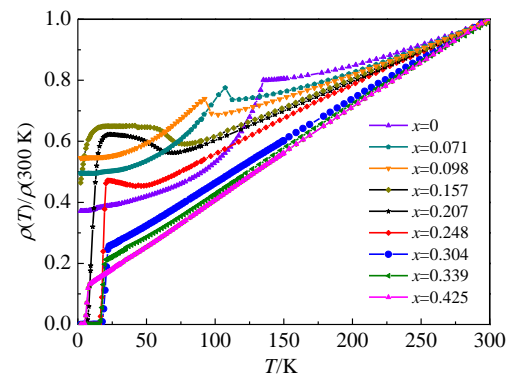


图 4 Ba(Fe<sub>1-x</sub>Ru<sub>x</sub>)<sub>2</sub>As<sub>2</sub> 归一化电阻率  $\rho(T)/\rho(300$  K) 随温度的变化曲线

Fig.4 Temperature dependent resistivity normalized to the room temperature value for Ba(Fe<sub>1-x</sub>Ru<sub>x</sub>)<sub>2</sub>As<sub>2</sub> with doping of  $x=0, 0.071, 0.098, 0.157, 0.207, 0.248, 0.304, 0.339, 0.425$

还存在于  $(\text{K,Sr})\text{Fe}_2\text{As}_2$ <sup>[24]</sup> 和  $\text{BaFe}_2(\text{As}_{1-x}\text{P}_x)_2$ <sup>[25]</sup> 等系统中。Dai 通过理论分析认为这是由局域化电子和巡游电子相互竞争造成的<sup>[26]</sup>，因而超导样品的  $\rho$ - $T$  关系还和电荷-自旋散射密切相关<sup>[27]</sup>，最佳掺杂域的线性  $\rho$ - $T$  依赖关系是非传统超导体和非费米流体的普遍特征和行为标志；最高超导转变温度在  $x = 0.304$  得到，当  $x > 0.304$ ， $T_c$  随掺杂量  $x$  继续增大而降低；与其它 3d、4d 金属电子型掺杂不同，但和同为 P 等价掺杂的情形相似<sup>[23,25]</sup>，Ru 掺杂对体系 AFM SDW 转变的压制过程慢很多(4 倍左右)，超导转变温度也相对较低，说明化学压力是促成该体系超导的主要因素，比起电子型掺杂，同价掺杂实现超导在结构上需要更大的晶格扭曲。

由电阻确定的样品  $T_{\text{SDW}}$  和  $T_c$  同列于表 1，据此在图 5 中绘出  $\text{Ba}(\text{Fe}_{1-x}\text{Ru}_x)_2\text{As}_2$  体系的  $T$ - $x$  ( $0 \leq x \leq 0.425$ ) 相图。从中可见：随掺杂量  $x$  增加，AFM SDW 转变逐步被压制，超导在一定掺杂范围内出现。相图中 SDW 与超导共存区域清晰可见，直到长程 AFM 序完全被压制并伴随  $T_c$  最大值出现，最高转变温度(超导域域顶)出现在  $T_{\text{SDW}}$  线外延至与  $x$  轴交点 ( $T = 0$  K) 附近，相图中箭头标注了 5 个超导样品位置。

### 2.3 掺杂 $\text{BaFe}_2\text{As}_2$ 的纵向磁阻

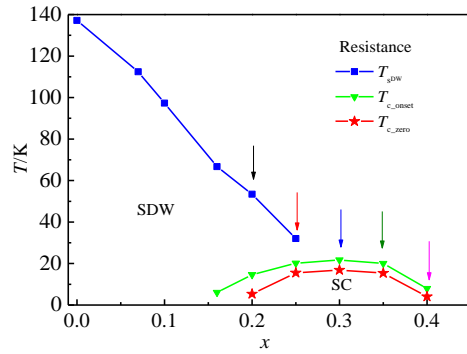


图 5  $\text{Ba}(\text{Fe}_{1-x}\text{Ru}_x)_2\text{As}_2$  的  $T$ - $x$  ( $0 \leq x \leq 0.425$ ) 相图

Fig.5 Phase diagram of  $\text{Ba}(\text{Fe}_{1-x}\text{Ru}_x)_2\text{As}_2$  against the Ru content  $x$

图 6 为  $x=0.207, 0.248, 0.304, 0.339, 0.425$  样品不同温度下随外场变化的纵向磁阻。由图可见，5 种超导样品的磁阻变化具有一定的相似性：(1)外场  $H$  下，样品电阻值减小，磁阻  $\Delta\rho$  为负；(2)相同温度下， $\Delta\rho/\rho_0$  ( $\rho_0$  为零场下样品电阻率)数值大小随外场  $H$  增强而增大，且与  $H$  呈现 2 次函数依赖关系。将  $\Delta\rho/\rho_0$  与  $H^2$  关系作于各自子图中，可见随  $H^2$  增大， $|\Delta\rho/\rho_0|$  线性

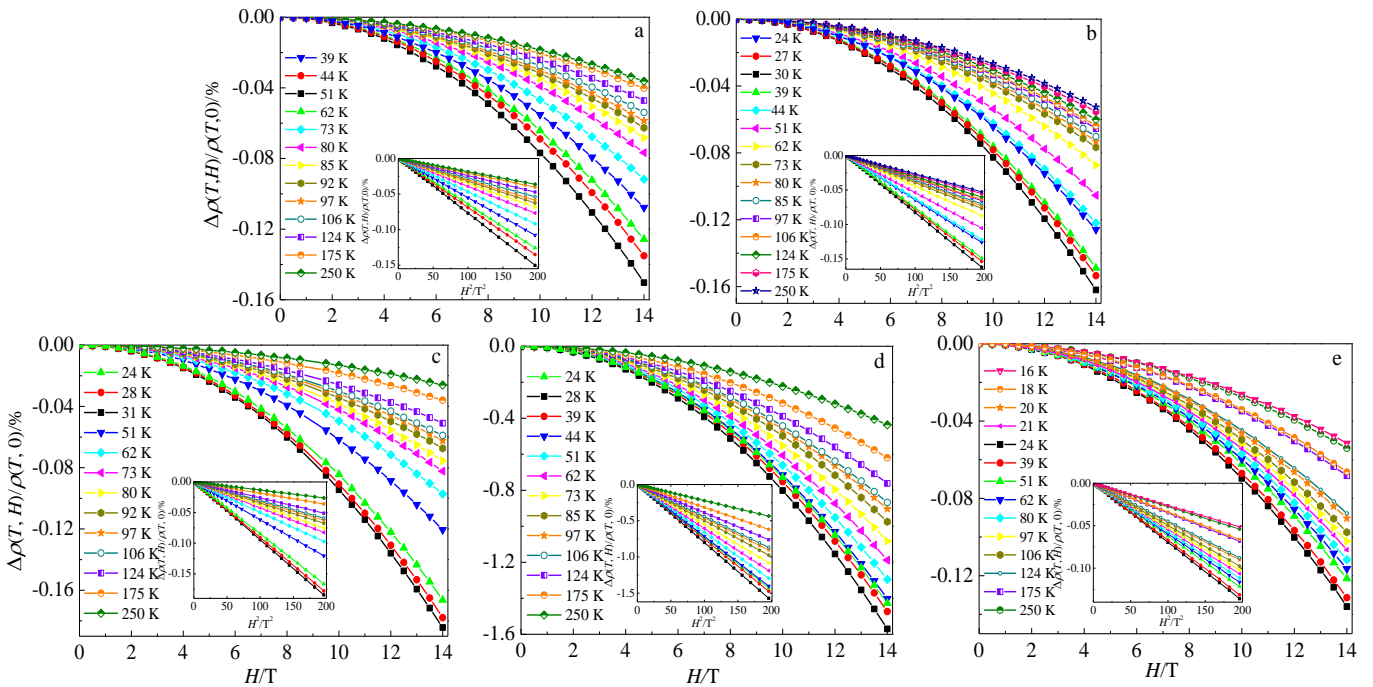


图 6 不同温度下  $\text{Ba}(\text{Fe}_{1-x}\text{Ru}_x)_2\text{As}_2$  ( $x=0.207, 0.248, 0.304, 0.339, 0.425$ ) 单晶样品随外磁场变化的纵向磁阻曲线，插图内是  $\Delta\rho/\rho_0$ - $H^2$  曲线

Fig.6 Magnetic field dependence of the resistivity of  $\text{Ba}(\text{Fe}_{1-x}\text{Ru}_x)_2\text{As}_2$  single crystals at different temperatures (the longitudinal  $\Delta\rho/\rho_0$  values are plotted vs  $H^2$  in the inset): (a)  $x=0.207$ , (b)  $x=0.248$ , (c)  $x=0.304$ , (d)  $x=0.339$  and (e)  $x=0.425$

增加; (3) 相同外场下, 随温度降低  $|\Delta\rho|$  变大, 但在低温区当  $T$  低于某一温度  $T_0$  后,  $|\Delta\rho|$  随温度继续降低而变小。

负的纵向磁阻来源于磁场压制了体系的 AFM 自旋涨落, 自旋涨落减弱降低了对载流子的散射和由此贡献的电阻率  $\rho_{sf}$ 。一般来说, 当自旋涨落发生在铁砷化合物和铁砷超导体等准二维体系中时<sup>[5,7]</sup>,  $\rho_{sf}(T)$  与温度  $T$  呈线性依赖关系  $\rho_{sf}(T) \sim T$ <sup>[28,29]</sup>。

与具有 AFM 绝缘体母相的 Cu 基超导体不同, BaFe<sub>2</sub>As<sub>2</sub> 和 Ru 掺杂 Ba-122 体系的正常态电阻率呈金属性, 因此讨论 Ba(Fe<sub>1-x</sub>Ru<sub>x</sub>)<sub>2</sub>As<sub>2</sub> 磁性时, 需要同时考虑局域磁化率和巡游电子的磁性。局域磁化率呈现居里-外斯行为, 而体系的磁化率则由巡游电子磁性决定<sup>[2]</sup>。使用 INS 和 NMR 技术对 Ba-122 和 Co 掺杂 Ba-122 体系的研究结果及自旋动力学分析表明, 体系动态自旋磁化率的虚部  $\chi''(q,\omega)$  可以很好地由二维 AFM 金属巡游电子模型描述<sup>[6,7,9]</sup>, 随着  $q = 0$  和  $q \approx Q_{AF}$  模式间耦合的建立<sup>[30]</sup>, 外场对体系性质的影响得以显现, 一级近似下体系的动态自旋磁化率表示为

$$\chi''_H(q,\omega) = \chi''_0(q,\omega) [1 - a(T)H^2] \quad (1)$$

式中,  $a(T)$  为模式间耦合系数<sup>[31]</sup>, AFM 作用下  $a(T)$  为正。自旋涨落对费米面附近的电子散射最为显著, 因此  $\chi''(q,\omega)$  决定了自旋涨落引起的体系电阻率变化  $\Delta\rho(T,H)$ <sup>[27]</sup>, 外磁场  $H$  下电阻率的变化可表成:

$$\Delta\rho(T,H) \sim -a(T)\chi''_0(q,\omega)H^2 \sim -a(T)\rho_{sf}H^2 \sim -a(T)TH^2 \quad (2)$$

图 6 子图中  $\Delta\rho$  随  $H^2$  增大线性降低, 由(2)式说明  $a(T)$  数值为正, AFM 序主导着样品中自旋涨落。

图 6 中, 注意到在相同温度和外场下, 不同掺杂率样品纵向磁阻大小有所不同, 为此定义纵向磁阻系数

$$\gamma(T) = -\frac{\Delta\rho(T,H)}{H^2} \quad \text{即}$$

$$\Delta\rho(T,H) = -\gamma(T)H^2 \quad (3)$$

并在图 7 做出  $\gamma(T)$  随温度  $T$  的变化关系。

由图可见: (1) 不同样品的  $\gamma(T)$  曲线随温度变化趋势相似, 但随掺杂量  $x$  降低而整体抬升, 说明欠掺杂样品内自旋涨落较为剧烈, 比较式(2)和(3)可知欠掺杂样品耦合系数  $a(T)$  较大, 耦合效应较强。随着掺杂量  $x$  增加, 曲线下移, 反映了 Ru 掺杂对体系内长程 AFM SDW 序的压制效应和压制过程; (2)  $\gamma(T)$  值随温度降低先升高, 达到最大值后在超导转变前有所下降, 这是由磁场对超导涨落的压制造成的, 磁场对超导涨落的压制效应等效地增大了体系电阻率, 在低温区部

分抵消甚至胜过了由自旋涨落减弱造成的电阻率减小; (3) 高温区顺磁状态下  $\gamma(T)$  随温度变化不明显, 但相同温度下  $x = 0.207, 0.248$  欠掺杂样品的  $\gamma(T)$  值大于  $x = 0.304, 0.339, 0.425$  最佳掺杂及过掺杂样品; (4) 文献[21]使用 NMR 技术研究了 Ru 欠掺杂样品 Ba(Fe<sub>0.77</sub>Ru<sub>0.23</sub>)<sub>2</sub>As<sub>2</sub> 磁序和超导的微观共存与竞争, 通过对比发现其自旋-晶格弛豫率  $1/T_1T$  随温度  $T$  的变化关系, 与 Ru 欠掺杂样品的  $\gamma(T)$  曲线在形状上高度相似。参量  $1/T_1T$  在 NMR 实验中是用来表征体系 AFM 自旋涨落强度的特征量<sup>[9,21]</sup>, 这说明纵向磁阻大小与体系 AFM 自旋涨落密切相关。

自旋-晶格弛豫率  $1/T_1T$  可按交错磁化率表达, 对温度依赖展现居里-外斯行为  $1/T_1 \propto \frac{T}{T-\theta}$  或  $\chi_0 \propto \frac{1}{T-\theta}$ ,  $\theta$  为居里-外斯温度且  $\theta \sim T_{SDW}$ <sup>[9,21]</sup>。  $\gamma(T)$  与  $1/T_1T$  的拓扑相似性使我们相信纵向磁阻系数  $\gamma(T)$  对温度也呈居里-外斯关系, 通过比较(2)和(3)两式可推测模式耦合系数  $a(T) \propto \frac{\gamma}{T}$  与交错磁化率相关, 为此图 8a 做出了不同掺杂样品的  $\frac{T}{\gamma} \propto a(T)^{-1}$  随温度变化关系曲线。

从图 8a 可见, 对于  $x = 0.207, 0.248$  欠掺杂样品,  $T/\gamma$  和  $T$  存在良好线性关系, 表明与  $1/T_1T$  一致,  $\gamma(T)$  确实具有居里-外斯行为且  $\gamma(T) = -\frac{\Delta\rho(T,H)}{H^2} \propto \frac{T}{T-\theta}$ , 模

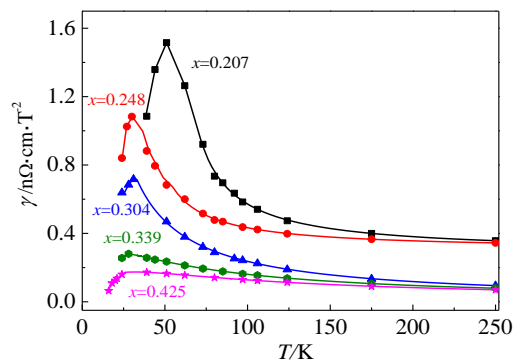


图 7 Ba(Fe<sub>1-x</sub>Ru<sub>x</sub>)<sub>2</sub>As<sub>2</sub> 纵向磁阻系数  $\gamma(T)$  随温度变化关系, 实线为拟合曲线, 其中  $x = 0.207, 0.248$  用  $C_1T/(T-\theta)$  拟合,  $x = 0.304, 0.339, 0.425$  用  $C_2T/(T-\theta)^2$  拟合,  $C_1, C_2$  是常数

Fig.7 Temperature dependence of the LMR coefficients  $\gamma(T)$  for Ba(Fe<sub>1-x</sub>Ru<sub>x</sub>)<sub>2</sub>As<sub>2</sub>, where  $\gamma(T)$  can be expressed as  $C_1T/(T-\theta)$  for  $x = 0.207, 0.248$ ,  $\gamma(T)$  is better fitted by  $C_2T/(T-\theta)^2$  for  $x = 0.304, 0.339, 0.425$  samples,  $C_1, C_2$  are constants

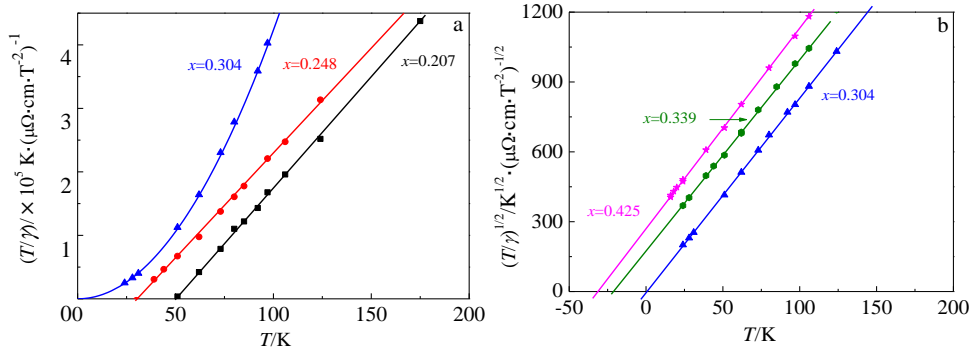


图 8 欠掺杂  $x = 0.207, 0.248$  样品的  $T/\gamma$  与  $T$  线性关系；最佳掺杂  $x = 0.304$  和过掺杂  $x = 0.339, 0.425$  样品的  $\sqrt{T/\gamma}$  与  $T$  线性关系

Fig. 8 Longitudinal magnetoresistance coefficient  $\gamma(T)$  shows a linear  $T$  dependence for the Ru underdoped Ba-122 samples with  $x = 0.207, 0.248$  (a); for the  $x = 0.304$  optimally doped and  $x = 0.339, 0.425$  overdoped samples,  $\sqrt{T/\gamma}$  exhibits a linear  $T$  dependence (b)

式耦合系数  $a(T) \propto \frac{1}{T-\theta}$ 。  $x = 0.207, 0.248$  样品的  $\theta$  值可由直线在  $T$  轴截距获得，分别为 50 和 31 K，非常接近体系长程 AFM 转变温度  $T_{SDW}$ 。但对于  $x = 0.304$  最佳掺杂样品，其  $T/\gamma$  曲线明显偏离线性，呈抛物线形态，为此将该样品的  $\sqrt{T/\gamma}-T$  曲线重做在图 8b 中，

可见线性关系良好。不仅  $x = 0.304$  样品， $x = 0.339, 0.425$  样品的  $\sqrt{T/\gamma}$  对温度也呈线性依赖，如图 8b，说明在最佳掺杂和过掺杂域，

$$\gamma(T) = -\frac{\Delta\rho(T,H)}{H^2} \propto \frac{T}{(T-\theta)^2}$$

模式耦合系数  $a(T) \propto \frac{1}{(T-\theta)^2}$ 。3 种样品  $\theta$  值可由  $\sqrt{T/\gamma}$

与横轴交点得出， $x = 0.304$  最佳掺杂样品的  $\theta$  约为 0 K，接近于 0 K 的居里-外斯温度表明体系为顺磁态，这与 S. Sharma 等人使用自旋极化密度泛函近似对  $Ba(Fe_{1-x}Ru_x)_2As_2$  体系磁结构的计算结果相一致<sup>[11]</sup>，说明 Ru 最佳掺杂域附近，体系内长程 AFM 序完全被压制，量子临界点上 AFM 相互作用不复存在<sup>[32]</sup>。数值接近于零且在高温区几乎不随温度变化的  $\gamma(T)$  说明过掺杂样品为顺磁态，这也和 S. Sharma 的计算结果相符合<sup>[11]</sup>。 $x = 0.339, 0.425$  样品的  $\theta$  值分别为 -20 和 -32 K，负的居里-外斯温度暗示处于顺磁态的过掺杂样品中仍存在短程 AFM 自旋涨落<sup>[33]</sup>，INS 和 NMR 实验也证明了这一点<sup>[6,9]</sup>。

上述分析表明：在 Ru 掺杂 Ba-122 铁基超导体中，巡游电子理论模型可以较好地描述外场对自旋涨落的影响以及由此引起的体系电阻变化。此外，还应注意随掺杂量  $x$  增加和长程 AFM 序被压制，模式耦合

系数  $a(T)$  在形式上的演化和改变，说明在欠掺杂和过掺杂两类样品中，载流子和自旋涨落相互作用方式发生了变化。与 Cu 基超导体不同，Fe 基超导体具有多能带结构，多种理论模型都以局域电子和巡游电子共存及相互作用为前提探讨该类化合物的物理化学性质<sup>[34,35]</sup>：在 s-d 能带的 AFM 金属材料中，s 带电子充当体系载流子，自旋涨落则由未充满的窄 d 带上的电子所贡献<sup>[27]</sup>，这时导带 s 的巡游电子在外场中产生的 Pauli 顺磁磁化率  $\chi_p$  与体系温度无关，只取决于费米面上电子态密度<sup>[36,37]</sup>。但在 Ru 最佳掺杂和过掺杂样品中，发现又一项  $\frac{1}{T-\theta}$  加入了耦合系数  $a(T)$  中，这是由

于随着 4d 金属 Ru 掺杂量增加，局域电子和巡游电子间强烈的杂化效应造成了电子轨道区分度下降<sup>[38,39]</sup>，此时巡游电子获得了和局域电子交错磁化率对温度相似的依赖形式，从而使耦合系数  $a(T) \propto \frac{1}{(T-\theta)^2}$ 。

### 3 结 论

1) 发现欠掺杂样品的纵向磁阻系数曲线与自旋-晶格弛豫率曲线在形状上高度相似，表明电阻值下降来源于磁场对体系 AFM 自旋涨落的压制效应，在研究铁砷化合物输运性质时，自旋涨落对体系电阻的影响应该被考虑到。

2) 使用二维 AFM 金属巡游电子模型对纵向磁阻进行了定性分析，发现随 Ru 掺杂量增加，模式耦合系数  $a(T)$  在形式上有所改变，说明伴随体系长程 AFM 序在低温下完全被压制，最佳掺杂和过掺杂样品内导带载流子与自旋涨落作用方式发生了变化，此时巡游电子随温度变化的磁性也应被考虑。

3) Ba(Fe<sub>1-x</sub>Ru<sub>x</sub>)<sub>2</sub>As<sub>2</sub> 体系纵向磁阻的研究, 为揭示铁砷化合物中载流子与自旋自由度间耦合相互作用提供了重要帮助, 纵向磁阻是研究磁涨落对输运性质影响和跟踪体系磁结构演化的有力工具。

#### 参考文献 References

- [1] Paglione J, Greene R L. *Nat Phys*[J], 2010, 6: 645
- [2] Johnston D C. *Advances in Physics*[J], 2010, 59(6): 803
- [3] Cao G H, Xu S G, Ren Z *et al.* *J Phys: Condens Matter*[J], 2011, 23(46): 464 204
- [4] Mazin I I, Singh D J, Johannes M D *et al.* *Phys Rev Lett*[J], 2008, 101: 057 003
- [5] Lester C, Chu J H, Analytis J G *et al.* *Phys Rev B*[J], 2010, 81(6): 064 505
- [6] Inosov D S, Park J T, Bourges P *et al.* *Nat Phys*[J], 2010, 6: 178
- [7] Diallo S O, Pratt D K, Fernandes R M *et al.* *Phys Rev B*[J], 2010, 81: 214 407
- [8] Ning F L, Ahilan K, Imai T *et al.* *J Phys Soc Jpn*[J], 2009, 78: 013 711
- [9] Ning F L, Ahilan K, Imai T *et al.* *Phys Rev Lett*[J], 2010, 104: 037 001
- [10] Rullier-Albenque F, Colson D, Forget A *et al.* *Phys Rev Lett*[J], 2009, 103: 057 001
- [11] Sharma S, Bharathi A, Chandra S *et al.* *Phys Rev B*[J], 2010, 81(17): 174 512
- [12] Qi Y P, Gao Z S, Wang L *et al.* *Europhys Lett*[J], 2012, 97(1): 17 008
- [13] Ghosh S, Raghuvanshi N, Singh A. *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*[J], 2016, 405: 264
- [14] Thaler A, Ni N, Kracher A *et al.* *Phys Rev B*[J], 2010, 82: 014 534
- [15] Zhang L, Singh D J. *Phys Rev B*[J], 2009, 79(17): 174 530
- [16] Wang X F, Wu T, Wu G *et al.* *Phys Rev Lett*[J], 2009, 102(11): 117 005
- [17] Rotter M, Tegel M, Johrendt D *et al.* *Phys Rev B*[J], 2008, 78(2): 020 503
- [18] Matsubayashi K, Katayama N, Ohgushi K *et al.* *J Phys Soc Jpn* [J], 2009, 78(7): 073 706
- [19] Colombier E, Bud'ko S L, Ni N *et al.* *Phys Rev B*[J], 2009, 79(22): 224 518
- [20] Ni N, Tillman M E, Yan J Q *et al.* *Phys Rev B*[J], 2008, 78(21): 214 515
- [21] Ma L, Ji G F, Dai J *et al.* *Phys Rev Lett*[J], 2012, 109(19): 197 002
- [22] Hussey N E. *J Phys: Condens Matter*[J], 2008, 20(12): 123 201
- [23] Kasahara S, Shibauchi T, Hashimoto K *et al.* *Phys Rev B*[J], 2010, 81(18): 184 519
- [24] Gooch M, Lv B, Lorenz B *et al.* *Phys Rev B*[J], 2009, 79(10): 104 504
- [25] Jiang S, Xing H, Xuan G *et al.* *J Phys: Condens Matter*[J], 2009, 21(38): 382 203
- [26] Dai J H, Si Q M, Zhu J X *et al.* *PNAS*[J], 2009, 106(11): 4118
- [27] Moriya T. *Spin Fluctuations in Itinerant Electron Magnetism* [M]. Berlin: Springer Series in Solid State Sciences, 1985: 56
- [28] Moriya T, Takahashi Y, Ueda K. *J Phys Soc Jpn*[J], 1990, 59: 2905
- [29] Hlubina R, Rice T M. *Phys Rev B*[J], 1995, 51: 9 253
- [30] Usami K, Moriya T. *J Phys Soc Jpn*[J], 1978, 44: 122
- [31] Usami K. *J Phys Soc Jpn*[J], 1978, 45: 466
- [32] Nandi S, Kim M G, Kreyssig A *et al.* *Phys Rev Lett*[J], 2010, 104(5): 057 006
- [33] Hu B, McCandless G T, Menard M *et al.* *Phys Rev B*[J], 2010, 81: 184 104
- [34] Medici L de', Hassan S R, Capone M J. *Supercond Novel Magn*[J], 2009, 22(6): 535
- [35] Yin W G, Lee C C, Ku W. *Phys Rev Lett*[J], 2010, 105: 107 004
- [36] Ueda K. *J Phys Soc Jpn*[J], 1977, 43(5): 1497
- [37] Nath R, Singh Y, Johnston D C. *Phys Rev B*[J], 2009, 79: 174 513
- [38] Yin Z P, Haule K, Kotliar G. *Nat Mater*[J], 2011, 10: 932
- [39] Medici L de', Giovannetti G, Capone M. *Phys Rev Lett*[J], 2014, 112: 177 001

## Evolution of In-Plane Electrical Transport Properties of Ru Doped BaFe<sub>2</sub>As<sub>2</sub> System Ba(Fe<sub>1-x</sub>Ru<sub>x</sub>)<sub>2</sub>As<sub>2</sub>

Wu Dapeng<sup>1,2</sup>, Li Ning<sup>1</sup>, Zhai Yingying<sup>2</sup>, Yu Huaming<sup>1</sup>, Yu Jiao<sup>1</sup>

(1. Liaoning Shihua University, Fushun 113001, China)

(2. Northeastern University, Shenyang 110004, China)

**Abstract:** Single crystals of  $\text{Ba}(\text{Fe}_{1-x}\text{Ru}_x)_2\text{As}_2$  were grown out of self flux using conventional high-temperature solution growth techniques, and a  $T$ - $x$  ( $0 \leq x \leq 0.425$ ) phase diagram was summarized using the data derived from temperature dependent resistances. The longitudinal in-plane magnetoresistance (LMR) has been measured on different superconducting  $\text{Ba}(\text{Fe}_{1-x}\text{Ru}_x)_2\text{As}_2$  single crystals. For all the samples, a negative LMR is found in the paramagnetic state whose magnitude increases as  $H^2$ , and the suppression of spin fluctuations by the applied magnetic field could account for this minus LMR. The temperature dependent LMR coefficient curves are found to shift down systematically with the increasing doping level  $x$ , which shows the detailed procedure of suppression and the existence of drastic magnetic fluctuation in the underdoped samples. The analysis of its  $T$  dependence in an 2D itinerant nearly antiferromagnetic metal model evidences that the mode coupling coefficient  $a(T)$  exhibits a qualitative change of  $T$  variation with increasing Ru content. The latter occurs exactly at quantum critical point (QCP) where the antiferromagnetic ground state is completely suppressed, indicating the change of interaction between the conduction electrons and the fluctuating magnetic moments. LMR provides a powerful tool for studying the coupling effect between the charge carriers and the spin degrees of freedom in such iron pnictide materials.

**Key words:** iron-arsenic compound; longitudinal magnetoresistance; itinerant electrons; spin fluctuation

---

Corresponding author: Wu Dapeng, Ph. D., School of Science, Liaoning Shihua University, Fushun 113001, P. R. China, Tel: 0086-24-56863803, E-mail: wudapeng@lnpu.edu.cn