

# 压力调控 FePSe<sub>3</sub> 薄膜的超导电性<sup>1</sup>

程怡, 李美伦, 肖宏, 林传龙

(北京高压科学研究中心, 北京 100093)

**摘要:** 二维层状材料是一类由共价键或离子键强烈结合的原子平面, 通过范德华力相互堆叠而形成的特殊材料体系。其独特的层间弱相互作用使材料的厚度能够实现精确调控, 从而展现出丰富的维度依赖物理性质。本文以典型二维层状材料 FePSe<sub>3</sub> 为研究对象, 利用机械剥离方法制备出不同厚度的薄层样品, 并结合金刚石对顶砧技术, 对 FePSe<sub>3</sub> 块体及薄层样品在高压条件下的电输运性质进行了系统研究, 重点探讨压力效应和尺寸效应对其正常态电输运行为及超导相变特性的影响。实验结果表明, 块体 FePSe<sub>3</sub> 样品展示出压力调制的超导电性, 在 15 GPa 左右超导转变温度  $T_c$  出现最小值, 同时霍尔系数  $R_H$  也降至最低。与文献报道的体材料行为一致, 暗示压力可能引发费米面重构。与块体 FePSe<sub>3</sub> 样品相比, 薄层样品的超导态减弱, 表现为  $T_c$  的降低, 且  $R_H$  随压力增加呈单调递减趋势。表明二维受限电子态抑制了费米面重构的发生。本研究为理解 FePSe<sub>3</sub> 的电子态演化机制提供了关键实验依据。

**关键词:** 高压; 二维层状材料 FePSe<sub>3</sub>; 薄层样品; 电输运性质; 超导; 霍尔系数

**中图分类号:** O521.2      **文献标识码:** A

## 引言

二维层状材料是一类面内原子之间通过共价键或离子键紧密结合, 层与层之间由微弱的范德瓦尔斯相互作用力连接的材料, 其晶体一般由二维原子面堆垛而成, 因此这类层状材料很容易通过各种方法, 例如机械解理技术以及液相解理技术, 实现厚度或层数上的减小。当二维材料的厚度减小到单层甚至单层时, 电子结构随之发生改变, 并引发一系列新奇的量子物态<sup>[1-8]</sup>, 例如单层 NbSe<sub>2</sub><sup>[9]</sup>和插层 MoS<sub>2</sub><sup>[10]</sup>中的伊辛超导; 薄层 CrI<sub>3</sub><sup>[11]</sup>和 Cr<sub>2</sub>Ge<sub>2</sub>Te<sub>6</sub><sup>[12]</sup>中的长程磁有序即二维磁性; 以及拓扑特性——2014 年, Qian 等人预言了单层 1T'-MX<sub>2</sub> (M = W, Mo; X = Te, Se, S) 的二维拓扑绝缘体, 具有量子自旋霍尔效应<sup>[13]</sup>, 并且 Tang 等人 and Wu 等人分别在 2017 和 2018 年观测到了单层 1T'-WTe<sub>2</sub> 中的强自旋-轨道耦合导致的能带杂化和能隙打开、非平庸拓扑导致的边缘导电态<sup>[14]</sup>和转变温度高达 100 K 的自旋霍尔效应<sup>[15]</sup>。

近年来, 过渡金属硫代或硒代磷酸盐化合物(TMDs)成为一类新兴的二维层状材料, 其化学表达式一般为 MPX<sub>3</sub> (M=Mn, Fe, Ni 等; X=Se, S 等)。其中的 FePSe<sub>3</sub> 结构稳定, 具有较高的面内刚度, 可以直接从块体材料中剥离出独立的单层, 并且剥离的 FePSe<sub>3</sub> 样品在环境条件下, 可以保持稳定的结构<sup>[16]</sup>。其在常压下为三角层状晶体结构, 其原子层是由一个 P 原子连接 3 个 Se 原子组成 [P<sub>2</sub>Se<sub>6</sub>]<sup>4-</sup> 单元, 同时, 每个 Fe 原子连接 6 个 Se 原子组成八面体配位围绕在 [P<sub>2</sub>Se<sub>6</sub>]<sup>4-</sup> 单元周围形成完美的蜂窝晶格结构<sup>[17]</sup>, 层间由范德瓦尔斯相互作用力相连接, 沿 c 轴堆垛排列, 空间群为 R $\bar{3}$  (NO.148), 称之为低压相 LP。块体单晶 FePSe<sub>3</sub> 在施加压力的情况下, 在大约 8 GPa 左右, 同时经历了平面内的晶格坍塌、从高自旋态 (S = 2) 到低自旋态 (S = 0)、由半导体到金属的转变以及结构相变为高压新相 HP, 空间群为 C2/m (NO.12)<sup>[18-19]</sup>。在压力进一步升高的过程中, FePSe<sub>3</sub> 在 9.0 GPa 出现超导态并一直保持到 67.7 GPa (超导态中主要载流子为空穴), 发生了两次同构或准同构的二级相变, 并且在 20 GPa 可能发生了费米面重构<sup>[18-19]</sup>。

FePSe<sub>3</sub> 作为一种新兴的二维层状材料, 虽然 Wang 等人<sup>[18]</sup>和郑飞力等人<sup>[19]</sup>已经对 FePSe<sub>3</sub> 单晶块体材料在高压下的结构变化与电输运性质进行了充分的研究, 但是薄层 FePSe<sub>3</sub> 压力条件下的电输运性质仍然是空白的。本实验采用 FePSe<sub>3</sub> 作为研究对象, 利用机械剥离方法制备出薄层材料, 结合高压电学

<sup>1</sup>收稿日期: xxxx-xx-xx; 修回日期: xxxx-xx-xx

基金项目: 国家自然科学基金委员会-中国工程物理研究院“NSAF”联合基金(批准号: U1530402); 国家自然科学基金(批准号: 11574338)

作者简介: 程怡(2000-), 女, 硕士研究生, 主要从事高压下二维材料的强关联超导研究。  
E-mail: yi.cheng@hpstar.ac.cn

通讯作者 1: 肖宏(1977-), 女, 博士, 研究员, 主要从事强关联超导研究。E-mail: hong.xiao@hpstar.ac.cn

通讯作者 2: 林传龙(1984-), 男, 博士, 研究员, 主要从事高压相变动力学研究。

E-mail: chuanlong.lin@hpstar.ac.cn

1 DAC (Diamond Anvil Cell 即金刚石对顶砧), 对  $\text{FePSe}_3$  块体和薄层样品高压条件下的电输运性质进行了  
2 系统的表征与研究。将  $\text{FePSe}_3$  块体和薄层样品的约化电阻-温度曲线拟合并对比两者的霍尔系数  $R_H$  随  
3 压力的变化关系发现, 在温度区间 50~200 K 内, 压力只抑制块体样品的电子-声子散射, 对高阶散射  
4 几乎无影响, 但薄层样品的两类散射均被抑制, 同时与块体  $\text{FePSe}_3$  样品相比, 薄层材料的高阶散射和  
5 电子-声子散射增强, 超导态减弱, 表现为超导转变温度  $T_c$  的降低,  $R_H$  随压力的变化趋势也发生了变  
6 化。本研究填补薄层  $\text{FePSe}_3$  在高压电输运性质研究方面的空白。

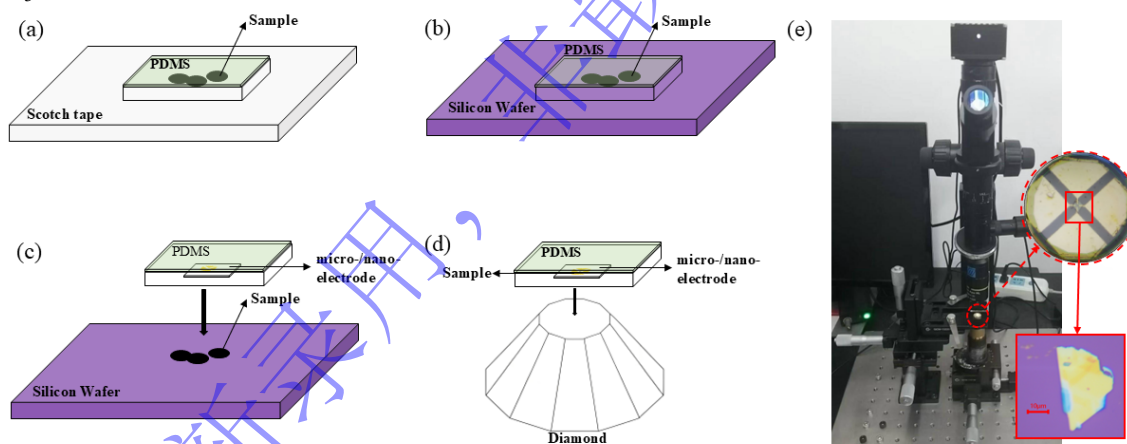
## 7 1、 实验方法

### 8 1.1 样品表征

9 本实验采用日本电子的 J200 场发射扫描电子显微镜 (SEM) 及其配套的能量散射光谱仪 (EDS),  
10 在室温、常压下对块体单晶  $\text{FePSe}_3$  进行测试, 分别得到其表面形貌信息和样品表面的元素组成、元素  
11 含量、元素分布信息。薄层样品的厚度信息则是用 Asylum Research Cypher ES 系列 AFM 测量得到。

### 12 1.2 薄层样品制备与装填

13 薄层样品的制备与 DAC 装填的方法大致如图 1(a)~(d)所示。首先, 利用胶带的粘性使层状材料解  
14 理, 如图 1(a)所示; 然后用聚二甲基硅氧烷 (PDMS) 将解理出的样品从胶带转移到干净的硅片上, 如  
15 图 1(a)~(b)所示; 然后用转移台和 PDMS 将微纳电极转移到样品上, 如图 1(c)所示; 之后将样品和微纳  
16 电极从硅片上取下, 将 DAC 的 piston 端固定在如图 1(e)所示的转移台下方, 利用 PDMS 将样品和微纳  
17 电极同时转移到干净的金刚石台面上, 如图 1(d)所示, 图 1(e)的插图是所有转移操作结束后, 微纳电极  
18 和样品在金刚石台面上的照片, 图片上金色部分均是微纳电极, 金刚石台面中心的不规则物体是剥离  
19 出的薄层样品。本实验所使用的胶带为 3M 公司生产的 Scotch 胶带, 实验所用的 PDMS 固体薄膜和  
20  $\text{FePSe}_3$  样品来源于南京牧科纳米科技有限公司。



21  
22 图 1(a)~(d) 机械剥离法制备薄层样品以及将样品和微纳电极转移到金刚石上的操作过程示意图, (e)转移台 (红色圆圈内  
23 的插图)为微纳电极和样品在 DAC 下台面上的照片, 红色方框内为用机械剥离法制备出的薄层  $\text{FePSe}_3$  在硅片上的电镜照  
24 片)

25 Fig.1 (a)-(d) Schematic illustration of the operations for exfoliating thin-flake specimens via micromechanical cleavage and  
26 transferring the sample-micro/nano-electrode assembly onto the diamond anvil, (e) transfer stage. The red-circle inset shows the  
27 optical micrograph of the micro/nano-fabricated electrodes and the sample on the DAC platform and the red-box inset shows the  
28 thin-flake  $\text{FePSe}_3$  prepared by mechanical exfoliation on the Si substrate.

### 29 1.3 高压电输运测量实验

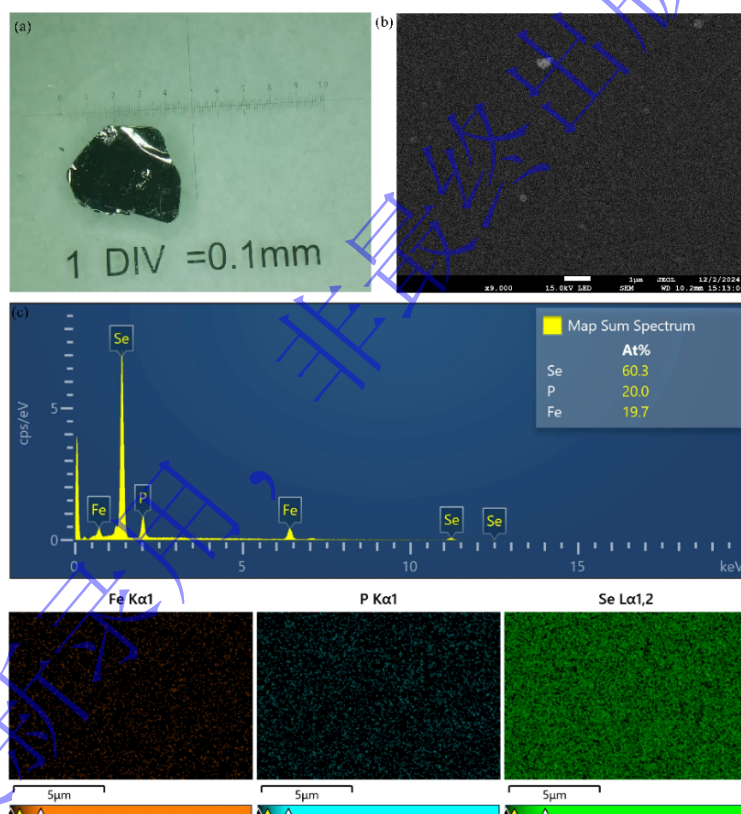
30 本实验中高压电输运性质的表征主要采用美国 Quantum Design(QD)公司的 PPMS 结合高压电学  
31 DAC 对样品进行电输运性质表征。其中高压电学 DAC 采用铍铜垫片作为封垫材料, 利用激光打出圆  
32 孔, 在圆孔及整个压痕处铺一层立方氮化硼 (c-BN), 最后在垫片中心再打出合适大小的孔作为样品腔,  
33 以硅油 (约 3 GPa 以上固化) 为传压介质, 以红宝石 ( $\text{Al}_2\text{O}_3:\text{Cr}^{3+}/\text{Ruby}$ ) 为压标。在块体  $\text{FePSe}_3$  样品的  
34 电输运测试过程中, 电路的搭建主要利用铂片和铂丝: 用不锈钢刀片将 Pt 片手工切割出 4 个细长的三  
35 角形和长条形, 分别作为一次电极和二次电极, 用 AB 银胶依次将一次电极与方形样品的四角连接,  
36 用环氧树脂 AB 胶将二次电极固定在用 502 胶水做好绝缘的垫片正面, 然后用导电银胶将二次电极外  
37 端用铂丝与 DAC 的接线柱连接, 而二次电极与一次电极的连接则是通过两个金刚石之间的压力使其紧

1 紧贴合在一起实现的。在薄层  $\text{FePSe}_3$  样品的电输运测试过程中，测试电路中的一次电极则由微纳电极  
2 代替（微纳电极的材质为金），用 AB 胶将二次电极固定在绝缘的垫片背面，垫片的绝缘则是背面用黑  
3 胶、侧面和正面用 502 胶水实现的。数据采集则是通过 PPMS，采用 Van der Pauw 法，进行 2~300 K  
4 温度区间内的精准控制的高压变温电输运测试，测量过程采用升温测试获得样品在不同压力下电阻随  
5 温度的变化曲线，同时测量了固定温度下 -9~9 T 磁场范围内的霍尔电阻。

## 6 2、 结果与讨论

### 7 2.1 常压下 $\text{FePSe}_3$ 样品的物相鉴定结果

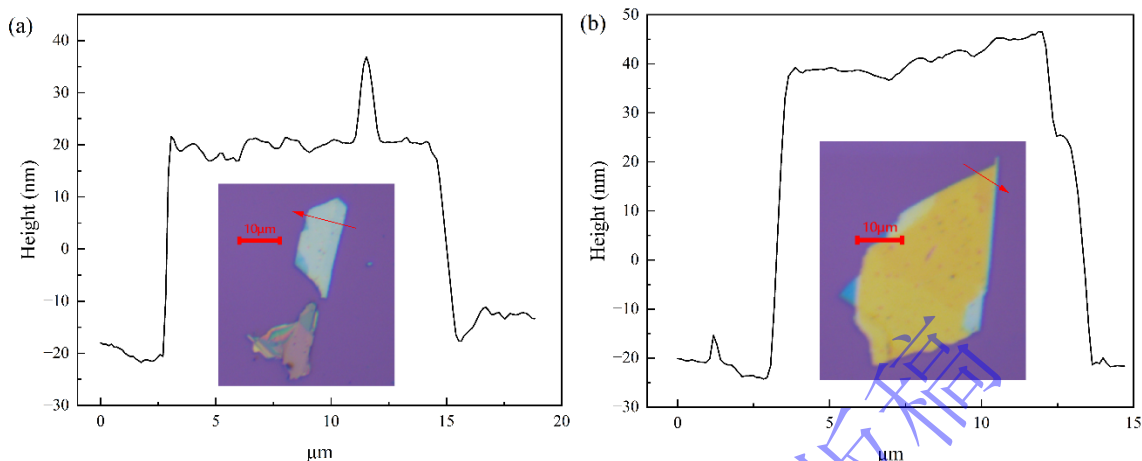
8 图 2 给出了室温、常压下  $\text{FePSe}_3$  块体单晶样品的物相鉴定的结果。其中图 2(a)是  $\text{FePSe}_3$  样品的电  
9 镜照片，其在常压下为黑色有金属光泽的晶体。图 2(b)是扫描电子显微镜 (SEM) 照片，放大倍数为  
10 9000 倍，扫描区域内样品表面平坦光滑。图 2(c)给出了图 2(b)中样品区域表面能量散射光谱仪 (EDS)  
11 的面扫结果，分别为 EDS 能谱图以及 Fe、P、Se 三种元素的分布图，其中 EDS 能谱图显示扫描区域  
12 内样品表面由 Fe、P、Se 三种元素构成，其元素含量比大约为 1: 1: 3，且 Fe、P、Se 三种元素的分  
13 布图显示三种元素均匀分布在样品表面。



14 图 2 块体单晶  $\text{FePSe}_3$  的物相鉴定结果。(a)电镜照片,(b) SEM 照片,(c) EDS 的面扫结果

15 Fig.2 Characterization of bulk single crystal  $\text{FePSe}_3$ . (a) Optical image. (b) SEM image. (c) EDS map scan results.

16 图 3 给出了在室温、常压条件下用 AFM 测量薄层  $\text{FePSe}_3$  样品的厚度结果，图 3(a)和图 3(b)的插图  
17 均为机械剥离法剥离出薄层  $\text{FePSe}_3$  样品并将其转移到硅片上后的电镜照片，照片放大倍数为 50 倍，  
18 图片上紫色区域为硅片表面，蓝色、银白色及黄色的不规则样品为剥离出的薄层  $\text{FePSe}_3$  样品，当剥离  
19 出的样品厚度不同时，其在电镜下呈现的颜色也不同，且样品厚度越大，样品的金属光泽越明显。图  
20 3(a)和图 3(b)的插图中的样品的厚度分别为 40 nm 和 60 nm。但是由于使用 AFM 测量薄层样品的厚度  
21 会对样品表面造成破坏，损坏的样品无法进行后续的高压电输运测试，因此对于本实验中用于高压电  
22 输运测试的薄层  $\text{FePSe}_3$  样品 Thin-S1 和 Thin-S2，其实际厚度无法确定。虽然可以通过对比其电镜照片  
23 的色彩对比度的方法大致估算出其厚度分别在附近 40 nm 和 60 nm，但是通过这种方法得出的结果可能  
24 存在一定误差。  
25

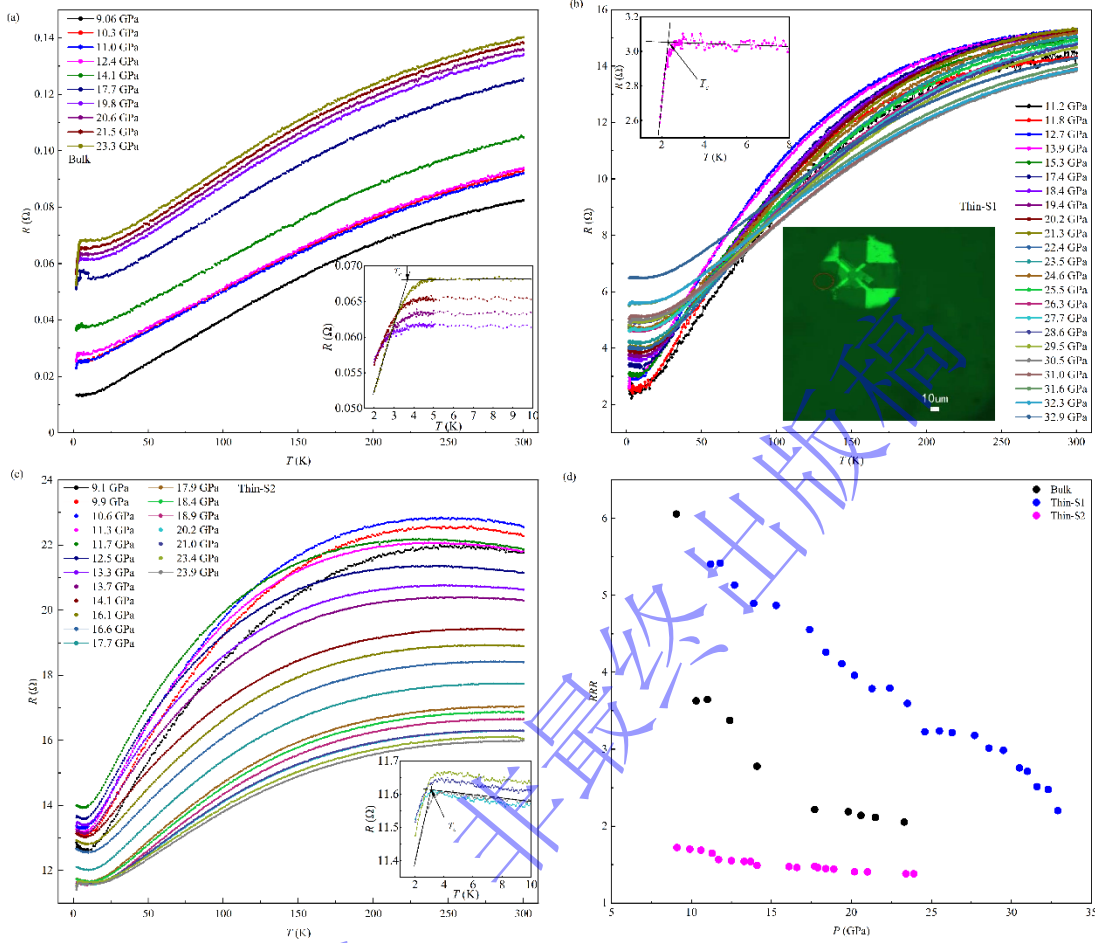


1  
2 图3 用 AFM 测量薄层 FePSe<sub>3</sub> 样品的厚度结果，插图为用机械剥离法制备出的薄层 FePSe<sub>3</sub> 在硅片上的电镜照片，图中  
3 红色箭头指向的方向为 x 轴正方向

4 Fig.3 The thicknesses of the few-layer FePSe<sub>3</sub> flakes were measured by AFM. The inset is optical image of thin-flake FePSe<sub>3</sub>  
5 prepared by mechanical exfoliation on the Si substrate and the positive x-axis direction is indicated by the red arrows.

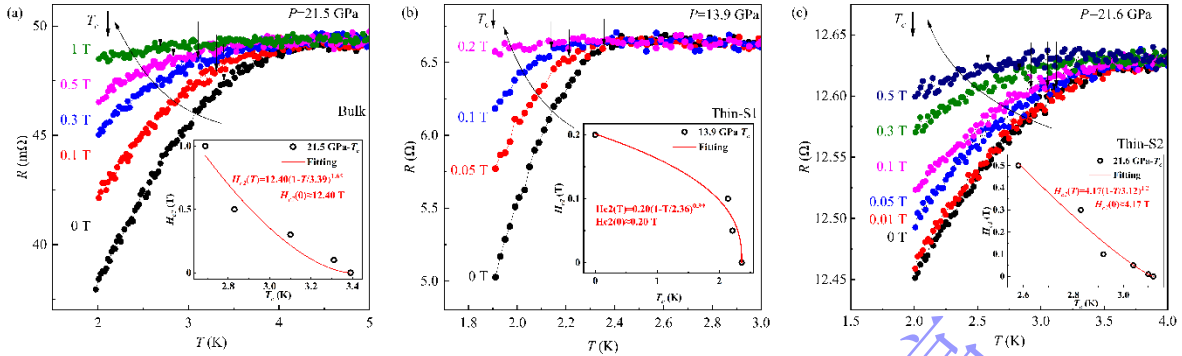
## 6 2.2 块体和薄层 FePSe<sub>3</sub> 样品的高压电输运表征

7 为了系统研究二维层状材料 FePSe<sub>3</sub> 薄层样品高压电输运行为的变化，一共进行了三组高压电输运  
8 表征实验，其中一组为块体 FePSe<sub>3</sub> 样品，样品厚度为 17 μm，两组为薄层 FePSe<sub>3</sub> 样品（第一组为 Thin-  
9 S1，第二组为 Thin-S2）的高压电阻测量。图 4(a)给出了 9.06~23.3 GPa 压力范围、2~300 K 温度区间内  
10 块体 FePSe<sub>3</sub> 样品电阻随温度的变化曲线，图 4(a)的插图为部分数据 2~10 K 的局部放大图。从中可以看  
11 到，块体 FePSe<sub>3</sub> 样品在 9.06 GPa 时已经呈现出良好的金属行为，当压力达到 11.0 GPa 时，FePSe<sub>3</sub> 样  
12 品在低温下出现超导现象，超导转变温度  $T_c$  为 2.76 K，且随着压力的进一步增加，FePSe<sub>3</sub> 样品低温下  
13 的超导态一直存在。图 4(b)给出了 Thin-S1 在 11.2~32.9 GPa 压力范围、2~300 K 温度区间内电阻随温  
14 度的变化曲线，插图为 FePSe<sub>3</sub> 样品 Thin-S1 在 DAC 内的电镜照片和部分数据 2~8 K 的局部放大图。从  
15 中可以清楚地看到，在 11.2 GPa 压力下，薄层 FePSe<sub>3</sub> 样品呈现出金属行为。当压力进一步增加到 13.9  
16 GPa 时，薄层 FePSe<sub>3</sub> 样品在低温下出现超导现象，超导转变温度  $T_c$  为 2.36 K。但是随着压力的进一步  
17 增加，在测试的温度区间内，并未观察到薄层 FePSe<sub>3</sub> 样品低温下的超导态，直到压力进一步升高到  
18 27.7 GPa 后，低温下的超导态才重新出现，并且一直保持到测试范围内的最高压力点 32.9 GPa。图  
19 4(c)给出了 Thin-S2 在 9.1~23.9 GPa 压力范围、2~300 K 温度区间内电阻随温度的变化曲线，插图为部  
20 分数据 2~10 K 的局部放大图。其电输运行为与 Thin-S1 的行为类似，在 9.1 GPa 压力下，Thin-S2 已经  
21 呈现出金属行为。在 13.3 GPa 和 13.7 GPa 压力下，Thin-S2 在低温下出现超导现象。随着压力的进一  
22 步增加，在测试的温度区间内，同样未观察到 Thin-S2 样品低温下的超导态，直到压力进一步升高到  
23 19.8 GPa 后，低温下的超导态才重新出现，并且一直保持到实验测量的最高压力 23.9 GPa。在三组实  
24 验的整个压力区间，测试温度范围内没有观察到零电阻现象。图 4(d)展示了三个 FePSe<sub>3</sub> 样品的剩余电  
25 阻比  $RRR = R(300\text{ K})/R(10\text{ K})$  随压力的变化，三个样品的  $RRR$  都随着压力的增加而减小。



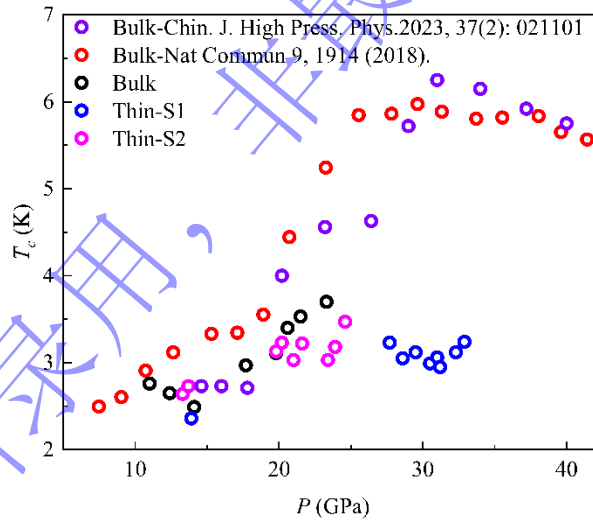
1  
2 图 4(a)块体 FePSe<sub>3</sub> 的电阻-温度曲线，插图为低温区间部分数据的局部放大图（图例与主图保持一致），(b)薄层 FePSe<sub>3</sub>  
3 样品 Thin-S1 的电阻-温度曲线，插图为低温区间部分数据的局部放大图（左上，图例与主图保持一致）和 Thin-S1 在  
4 DAC 内的电镜照片（右下），(c)薄层 FePSe<sub>3</sub> 样品 Thin-S2 的电阻-温度曲线，插图为低温区间部分数据的局部放大图  
5 （图例与主图保持一致），(d)剩余电阻比 RRR 随压力的变化。  
6 Fig.4 (a) Evolution of the electrical resistance as a function of temperature for bulk-FePSe<sub>3</sub>. The inset is enlarged view of the low-  
7 temperature region data for bulk-FePSe<sub>3</sub> (the legend remains identical to that of the main figure). (b) Evolution of the electrical  
8 resistance as a function of temperature for thin-flake FePSe<sub>3</sub> Thin-S1. The inset is enlarged view of the low-temperature region  
9 data for Thin-S1 (upper left, the legend remains identical to that of the main figure) and the optical image of Thin-S1 inside the  
10 DAC (lower right). (c) Evolution of the electrical resistance as a function of temperature for thin-flake FePSe<sub>3</sub> Thin-S2. The inset  
11 is enlarged view of the low-temperature region data for Thin-S2 (the legend remains identical to that of the main figure). (d)  
12 pressure dependence of RRR.

13 为了得到块体和薄层 FePSe<sub>3</sub> 超导态的上临界场，在高压电输运的实验过程中，分别在 21.5  
14 GPa、13.9 GPa 和 21.6 GPa 压力下，施加外加磁场，在低温区间测量了不同磁场下其电阻随温度的变  
15 化。图 5(a)~(c) 分别给出了块体 FePSe<sub>3</sub> 样品在 21.5 GPa 压力下、0~1 T 磁场范围内，Thin-S1 在 213.9  
16 GPa 压力下、0~0.2 T 磁场范围内和 Thin-S2 在 21.6 GPa 压力下、0~0.5 T 磁场范围内电阻随温度的变化  
17 曲线。图 5(a)~(c) 的插图分别给出了上临界场随  $T_c$  的变化关系，用方程  $H_{c2}(T) = H_{c2}(0)\left(1 - \frac{T}{T_c}\right)^n$  对块体  
18 FePSe<sub>3</sub> 样品、Thin-S1 和 Thin-S2 在不同磁场下  $T_c$  的数据进行拟合，拟合出的结果分别为  $H_{c2}(T)$   
19  $= 12.40\left(1 - \frac{T}{3.39}\right)^{1.65}$ ， $H_{c2}(T) = 0.20\left(1 - \frac{T}{2.36}\right)^{0.39}$  和  $H_{c2}(T) = 4.17\left(1 - \frac{T}{3.12}\right)^{1.2}$ ，其中  $H_{c2}(0)$  分别为 12.40  
20 T、0.20 T 和 4.17 T， $n$  分别为 1.65、0.39 和 1.2。与块体样品相比，薄层样品的参数  $H_{c2}(0)$  和  $n$  均有所降  
21 低，其中  $H_{c2}(0)$  反映了库珀对抵抗磁场诱导对称破缺的能力，其降低表明薄层样品中的超导态受到抑  
22 制，参数  $n$  的降低可能与系统中增强的涨落和散射有关。



1  
2 图5 固定压力、磁场作用下(a)块体 FePSe<sub>3</sub>, (b)Thin-S1 和(c)Thin-S2 电阻随温度的变化关系, 插图均为  $T_c$  随磁场的变化  
3 Fig.5 Temperature dependent electrical resistance of (a) bulk FePSe<sub>3</sub>, (b) Thin-S1 and (c) Thin-S2 under magnetic field at a fixed  
4 pressure, and the inset are  $T_c$  dependence of external magnetic field.

5 图6 总结了 FePSe<sub>3</sub> 块体和薄层样品电输运性质的测试结果, 给出了超导转变温度  $T_c$  随压力的变化  
6 关系, 其中红色圆点和紫色圆点分别为参考文献[18]和[19]中块体单晶样品的  $T_c$  随压力的变化关系。从  
7 中可以清楚地看到块体样品的  $T_c$  随压力的变化都是连续的, 薄层样品 Thin-S1 和 Thin-S2 的超导态随  
8 压力的变化是不连续的。在压力逐渐增加的过程中, Thin-S1 的超导态在 13.9 GPa 出现后, 在之后的几  
9 个压力点, 并未在测试温度范围内观测到超导, 且在 27.7 GPa 重新观测到后一直保持到 32.9 GPa;  
10 Thin-S2 的超导态在 13.3 和 13.7 GPa 出现后, 在之后的几个压力点, 同样未在测试温度范围内观测到  
11 超导, 且在 19.8 GPa 重新观测到后一直保持到 23.9 GPa。与块体样品相比, 薄层样品的超导转变温度  
12 有所减小, 即超导态减弱。

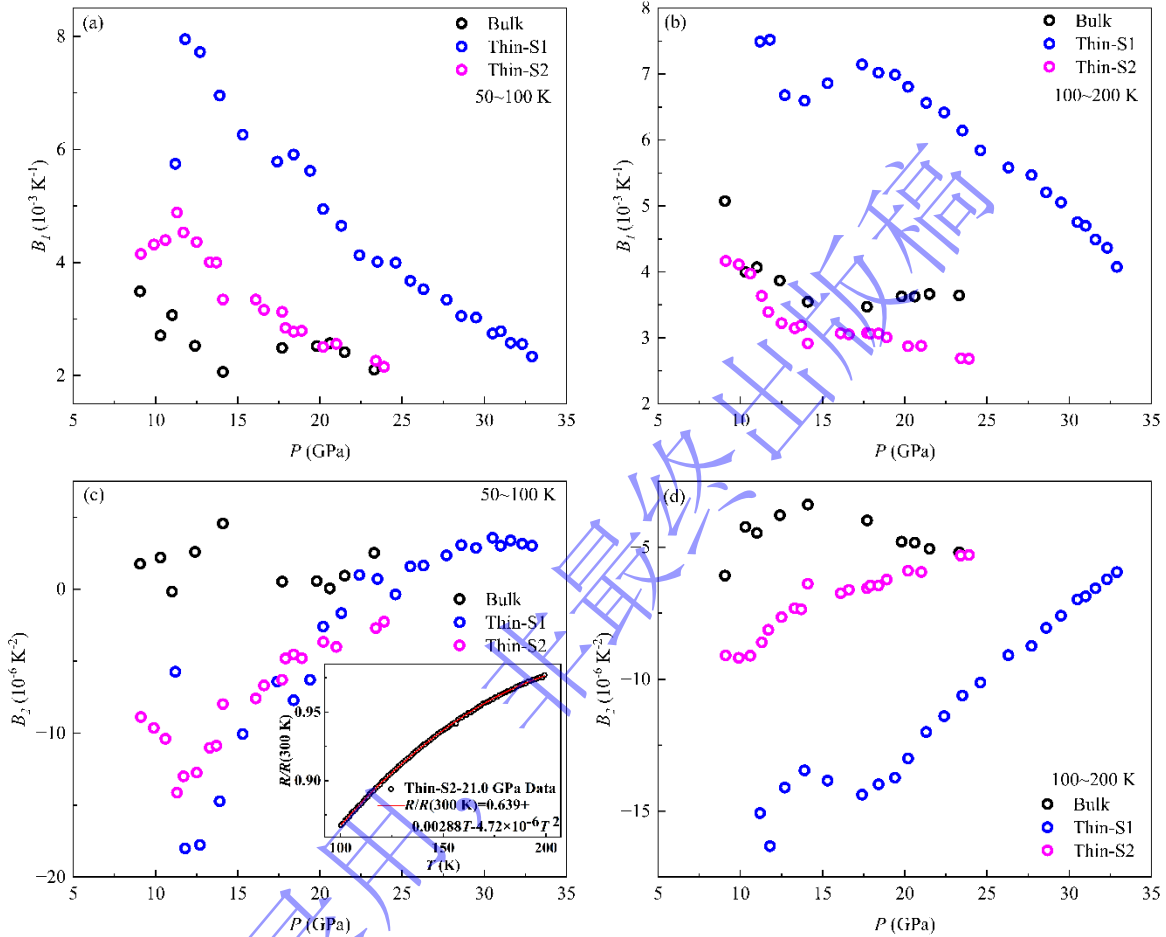


13  
14 图6 三组 FePSe<sub>3</sub> 电输运实验的超导转变温度-压力相图  
15 Fig.6 Superconducting transition temperature-pressure ( $T_c$ - $P$ ) phase diagram of FePSe<sub>3</sub> electrical-transport experiments.  
16 材料中的电阻率可以由

$$\rho = \rho_0 + \rho_{e-ph} + \rho_{HOS} \quad (1)$$

18 表示<sup>[20-21]</sup>, 其中,  $\rho_0$  为与温度无关的剩余电阻率, 一般来源于缺陷或杂质散射<sup>[21-22]</sup>,  $\rho_{e-ph} \propto T$ , 为由  
19 电子-声子散射主导的线性贡献<sup>[21-25]</sup>,  $\rho_{HOS} \propto T^2$  (HOS 为 High-Order Scattering 的简写), 为高阶散射机  
20 制的贡献, 例如电子-电子散射、声子非线性散射或磁散射<sup>[21,27-29]</sup>。FePSe<sub>3</sub> 块体和薄层样品在同一温度  
21 区间内表现出不同的电阻-温度依赖关系, 因此我们在 50~100 K 和 100~200 K 的温度区间内, 用方程  
22  $R/R(300\text{ K}) = B_0 + B_1T + B_2T^2$  对其约化电阻-温度曲线进行拟合<sup>[30]</sup>, 拟合出的参数  $B_1$ 、 $B_2$  随压力的变化  
23 关系如图 7(a)~(d)。以 21.0 GPa 压力下, 薄层 FePSe<sub>3</sub> 样品 Thin-S2 在 100~200 K 温度区间内的约化电  
24 阻数据为例, 如图 7(c) 的插图所示, 拟合结果为  $R/R(300\text{ K}) = 0.639 + 0.00288T - 4.72 \times 10^{-6}T^2$ 。其  
25 中, 系数  $B_1$  和  $B_2$  分别反映了电子-声子散射和高阶散射强度, 且  $B_1 > 0$  代表了典型的金属性行为。从图  
26 7 中可以看到, 三个样品的参数  $B_1$  和两个薄层样品的参数  $|B_2|$  随压力整体呈下降趋势, 但块体样品的参

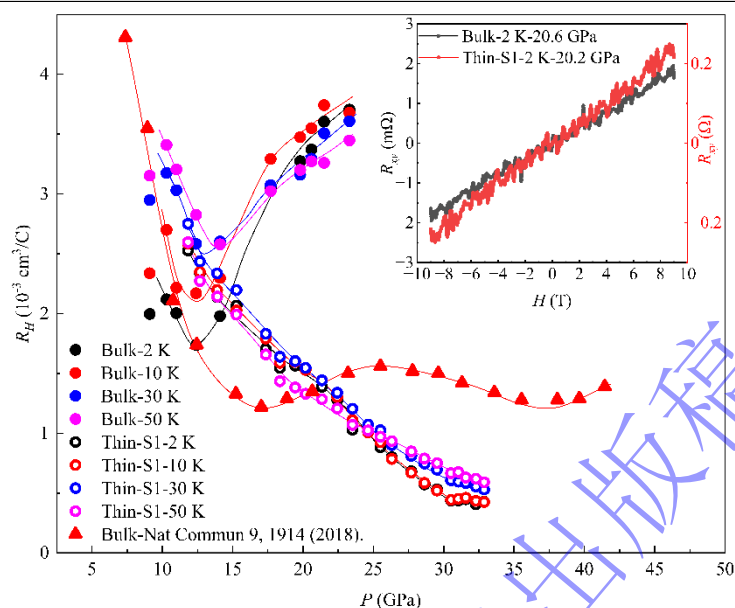
1 数 $|B_2|$ 变化不大, 说明在 50~100 K、100~200 K 温度区间内, 压力只抑制块体样品的电子-声子散射,  
2 对高阶散射几乎无影响, 但薄层样品的两类散射均被抑制。在温度区间 50~200 K 内, 与块体样品相比,  
3 Thin-S1 和 Thin-S2 的参数 $B_1$ 和 $|B_2|$ 均有所增加, 说明与块体 FePSe<sub>3</sub> 相比, 薄层样品的电子-声子散射  
4 和高阶散射有所增强。



5  
6 图 7 块体和薄层 FePSe<sub>3</sub> 样品在不同温度区间内(a)-(b)参数  $B_1$  和(c)-(d)参数  $B_2$  随压力的变化关系, 插图  
7 为 21.0 GPa 压力下, 薄层 FePSe<sub>3</sub> 样品 Thin-S2 在 100~200 K 温度区间内约化电阻随温度的变化关系

8 Fig.7 Pressure dependence of parameters (a)-(b)  $B_1$  and (c)-(d)  $B_2$  for bulk and thin-flake FePSe<sub>3</sub> in different temperature ranges,  
9 respectively. The inset is temperature-dependent reduced resistance of thin-flake FePSe<sub>3</sub> (Thin-S2) at 100-200 K and 21.0 GPa.

10 本实验还对 FePSe<sub>3</sub> 块体和薄层样品 Thin-S1 固定压力和温度下、-9~9 T 的霍尔电阻进行了测量,  
11 并计算得出图 8 中的霍尔系数  $R_H$  随压力的变化关系, 其中红色三角的数据是参考文献[18]中块体单晶  
12 样品在 10 K 下,  $R_H$  随压力的变化关系。实验发现, 块体和 Thin-S1 的霍尔电阻  $R_{xy}$  都随磁场呈线性变  
13 化, 且  $R_H$  在同一个量级。在 Wang 等人的块体实验中,  $R_H$  在 17 GPa 附近开始上升,  $T_c$  在约 20 GPa 附  
14 近上升趋势突然增大, 由此认为在 20 GPa 可能发生了费米面重构[18]。在本实验中, 块体样品的  $R_H$  同  
15 样随压力的增加先下降, 后在大约 13 GPa 时开始呈现上升趋势, 与  $T_c$  在约 15 GPa 时开始增加的趋势  
16 一致, 表明在 15 GPa 可能发生了费米面重构, 与 Wang 等人实验结果[18]的变化趋势一致, 压力大小有  
17 一定误差, 可能是压力标定存在一定误差等的原因。但是薄层样品 Thin-S1 的  $R_H$  随压力一直呈下降趋  
18 势。由于体材料的三维特性, 其层间耦合相对较强, 在压力下, 层间相互作用可能会诱发能带交叉、  
19 反转乃至 Lifshitz 跃迁, 其能带结构的演变比较复杂, 表现为霍尔系数  $R_H$  随压力呈非单调变化。薄层  
20 材料的层间耦合相对较弱, 层间跃迁被抑制, 导致其能带更趋近于二维结构, 随压力的演变更加平稳,  
21 表现为  $R_H$  随压力单调变化。



1  
2 图 8 在固定温度下, 块体 FePSe<sub>3</sub> 和 Thin-S1 的霍尔系数  $R_H$  随压力的变化关系, 插图为 2 K 下, 块体和 Thin-S1 分别在  
3 20.6 GPa 和 20.2 GPa 压力下, -9~9 T 的磁场范围内的霍尔电阻  $R_{xy}$   
4 Fig.8 Pressure dependence of  $R_H$  for bulk FePSe<sub>3</sub> and Thin-S1 at a fixed temperature. The inset is Hall resistance  $R_{xy}$  as a function  
5 of magnetic field from -9 T to 9 T, measured at a fixed temperature of 2 K under pressures of 20.6 GPa for the bulk sample and  
6 20.2 GPa for Thin-S1.

### 7 3、结论

8 通过单晶块体和薄层 FePSe<sub>3</sub> 的高压电输运测量实验, 研究了二维层状材料 FePSe<sub>3</sub> 块体和薄层样品  
9 高压电输运行为的变化。根据实验结果分析发现, 压力只抑制块体的电子-声子散射, 对高阶散射几乎  
10 无影响, 但薄层样品的电子-声子散射和高阶散射均被压力抑制, 且在 50~200 K 间相对于块体有所增  
11 强。与块体样品相比, 薄层样品的超导态减弱, 即超导转变温度  $T_c$  降低。随着压力的增加, 块体样品  
12 的霍尔系数  $R_H$  呈非单调变化, 但是薄层样品的  $R_H$  一直呈下降趋势。本文的研究结果为二维层状材料  
13 FePSe<sub>3</sub> 压力条件下的电子态演化机制提供了重要的实验依据。

### 14 参考文献

- 15 [1] Katsnelson M I, Novoselov K S, Geim A K. Chiral tunnelling and the Klein paradox in graphene[J].  
16 Nature physics, 2006, 2(9): 620-625. <https://www.nature.com/articles/nphys384>  
17 [2] Ferrari A C, Meyer J C, Scardaci V, et al. Raman spectrum of graphene and graphene layers[J]. Physical  
18 review letters, 2006, 97(18): 187401. <https://journals.aps.org/prl/abstract/10.1103/PhysRevLett.97.187401>  
19 [3] Frindt R F. Optical absorption of a few unit-cell layers of MoS<sub>2</sub>[J]. Physical review, 1965, 140(2A):  
20 A536. <https://journals.aps.org/pr/abstract/10.1103/PhysRev.140.A536>  
21 [4] Frindt R F. Superconductivity in ultrathin NbSe<sub>2</sub> layers[J]. Physical Review Letters, 1972, 28(5): 299.  
22 <https://journals.aps.org/prl/abstract/10.1103/PhysRevLett.28.299>  
23 [5] Liu C, Singh O, Joensen P, et al. X-ray and electron microscopy studies of single-layer TaS<sub>2</sub> and NbS<sub>2</sub>[J].  
24 Thin Solid Films, 1984, 113(2): 165-172.  
25 <https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/0040609084900257>  
26 [6] Joensen P, Frindt R F, Morrison S R. Single-layer MoS<sub>2</sub>[J]. Materials research bulletin, 1986, 21(4): 457-  
27 461. <https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/0025540886900115>  
28 [7] 高琦璇, 钟浩源, 周树云. 二维材料的新奇物理及异质结的能带调控[J]. 物理, 2022, 51(5): 310-  
29 318.  
30 GAO Qi-Xuan, ZHONG Hao-Yuan, ZHOU Shu-Yun. Novel physics of two-dimensional materials and  
31 band structure engineering in van der Waals heterostructures[J]. PHYSICS, 2022, 51(5): 310-318. DOI:  
32 10.7693/wl20220503  
33 [8] 方裕强, 涂雪洋, 刘以鑫, 彭炜, 牟刚, 黄富强. 大尺寸 2M-WS<sub>2</sub> 柔性超导材料制备与物性研究

- [J]. 功能材料与器件学报, 2025, 31(1): 42-47. DOI: [10.20027/j.gncq.2025.0008](https://doi.org/10.20027/j.gncq.2025.0008)
- FANG Yuqiang, TU Xueyang, LIU Yixin, PENG Wei, MU Gang, HUANG Fuqiang. Preparation and physical properties of large-sized 2M-WS<sub>2</sub> flexible superconducting material[J]. *Journal of Functional Materials and Devices*, 2025, 31(1): 42-47. DOI: [10.20027/j.gncq.2025.0008](https://doi.org/10.20027/j.gncq.2025.0008)
- [9] Xi X, Wang Z, Zhao W, et al. Ising pairing in superconducting NbSe<sub>2</sub> atomic layers[J]. *Nature Physics*, 2016, 12(2): 139-143. <https://www.nature.com/articles/nphys3538>
- [10] Lu J M, Zheliuk O, Leermakers I, et al. Evidence for two-dimensional Ising superconductivity in gated MoS<sub>2</sub>[J]. *Science*, 2015, 350(6266): 1353-1357. <https://www.science.org/doi/abs/10.1126/science.aab2277>
- [11] Huang B, Clark G, Navarro-Moratalla E, et al. Layer-dependent ferromagnetism in a van der Waals crystal down to the monolayer limit[J]. *Nature*, 2017, 546(7657): 270-273. <https://www.nature.com/articles/nature22391>
- [12] Gong C, Li L, Li Z, et al. Discovery of intrinsic ferromagnetism in two-dimensional van der Waals crystals[J]. *Nature*, 2017, 546(7657): 265-269. <https://www.nature.com/articles/nature22060>
- [13] Qian X, Liu J, Fu L, et al. Quantum spin Hall effect in two-dimensional transition metal dichalcogenides[J]. *Science*, 2014, 346(6215): 1344-1347. <https://www.science.org/doi/abs/10.1126/science.1256815>
- [14] Tang S, Zhang C, Wong D, et al. Quantum spin Hall state in monolayer 1T'-WTe<sub>2</sub>[J]. *Nature Physics*, 2017, 13(7): 683-687. <https://www.nature.com/articles/nphys4174>
- [15] Wu S, Fatemi V, Gibson Q D, et al. Observation of the quantum spin Hall effect up to 100 kelvin in a monolayer crystal[J]. *Science*, 2018, 359(6371): 76-79. <https://www.science.org/doi/full/10.1126/science.aan6003>
- [16] Du K, Wang X, Liu Y, et al. Weak van der Waals stacking, wide-range band gap, and Raman study on ultrathin layers of metal phosphorus trichalcogenides[J]. *ACS nano*, 2016, 10(2): 1738-1743. <https://doi.org/10.1021/acs.nano.5b05927>
- [17] Musari A A, Kratzer P. Lattice dynamics, elastic, magnetic, thermodynamic and thermoelectric properties of the two-dimensional semiconductors MPSe<sub>3</sub> (M= Cd, Fe and NI): a first-principles study[J]. *Materials Research Express*, 2022, 9(10): 106302. <https://iopscience.iop.org/article/10.1088/2053-1591/ac96d3/meta>
- [18] Wang Y, Ying J, Zhou Z, et al. Emergent superconductivity in an iron-based honeycomb lattice initiated by pressure-driven spin-crossover[J]. *Nature Communications*, 2018, 9(1): 1914. <https://www.nature.com/articles/s41467-018-04326-1>
- [19] 郑飞力, 颜建, 黄艳萍, 等. 二维层状材料 FePSe<sub>3</sub> 的高压物性[J]. *高压物理学报*, 2023, 37(2):021101. DOI: [10.11858/gywlyb.20230617](https://doi.org/10.11858/gywlyb.20230617)  
ZHENG Feili, YAN Jian, HUANG Yanping, et al. Physical Properties of Two-Dimensional Layered FePSe<sub>3</sub> under High Pressure[J]. *Chinese Journal of High Pressure Physics*, 2023, 37(2): 021101. DOI: [10.11858/gywlyb.20230617](https://doi.org/10.11858/gywlyb.20230617)
- [20] Ziman J M. Chapter 9.8[M]//Electrons and Phonons. Oxford: Oxford University Press, 1960: 456-478.
- [21] Ikeda K. Electrical resistivity of nickel, cobalt and their alloys[J]. *Transactions of the Japan institute of metals*, 1988, 29(3): 183-190. [https://www.jstage.jst.go.jp/article/matertrans1960/29/3/29\\_3\\_183/\\_article/-char/ja/](https://www.jstage.jst.go.jp/article/matertrans1960/29/3/29_3_183/_article/-char/ja/)
- [22] Grüneisen E. Die Abhängigkeit des elektrischen Widerstandes reiner Metalle von der Temperatur[J]. *Annalen der Physik*, 1933, 408(5): 530-540. <https://onlinelibrary.wiley.com/doi/abs/10.1002/andp.19334080504>
- [23] Bloch F. Zum elektrischen Widerstandsgesetz bei tiefen Temperaturen[J]. *Zeitschrift für Physik*, 1930, 59(3): 208-214. <https://link.springer.com/article/10.1007/BF01341426>
- [24] Ashcroft N W, Mermin N D. Chapter 16[M]//Solid State Physics. New York: Holt, Rinehart and Winston, 1976: 456-478.
- [25] Bid A, Bora A, Raychaudhuri A K. Temperature dependence of the resistance of metallic nanowires of diameter  $\geq 15$  nm: Applicability of Bloch-Grüneisen theorem[J]. *Physical Review B—Condensed Matter and Materials Physics*, 2006, 74(3): 035426. <https://journals.aps.org/prb/abstract/10.1103/PhysRevB.74.035426>
- [26] Butera R A, Waldeck D H. The dependence of resistance on temperature for metals, semiconductors, and superconductors[J]. *Journal of chemical education*, 1997, 74(9): 1090. <https://pubs.acs.org/doi/abs/10.1021/ed074p1090>

- 1 [27] Landau L D. The theory of a Fermi liquid[J]. Soviet Physics JETP-USSR, 1957, 3(6): 920-925.  
2 [28] Baber W G. The contribution to the electrical resistance of metals from collisions between electrons[J].  
3 Proceedings of the Royal Society of London. Series A-Mathematical and Physical Sciences, 1937,  
4 158(894): 383-396. <https://royalsocietypublishing.org/doi/abs/10.1098/rspa.1937.0027>  
5 [29] Klemens P G. The Thermal Conductivity of Monovalent Metals[J]. Proceedings of the Physical Society.  
6 Section A, 1954, 67(2): 194. <https://iopscience.iop.org/article/10.1088/0370-1298/67/2/116/meta>  
7 [30] De Haas W J, De Boer J. The electrical resistance of platinum at low temperatures[J]. Physica, 1934, 1(7-  
8 12): 609-616. <https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0031891434802479>

## Pressure-Tuned Superconductivity in FePSe<sub>3</sub> Thin Films

CHENG Yi, LI Meilun, XIAO Hong, LIN Chuanlong

(Center for High Pressure Science & Technology Advanced Research, Beijing 100093, China)

**Abstract:** Two-dimensional layered materials constitute a unique class of compounds in which strongly covalent or ionic atomic planes are stacked via van-der-Waals forces. This weak interlayer coupling allows the thickness to be precisely tuned down to few-layer or monolayer, giving rise to a rich spectrum of dimensionality-dependent physical properties. In this work, we take the prototypical van der Waals layered compound FePSe<sub>3</sub> as a model system and, by combining mechanical exfoliation with high-pressure techniques based on a diamond anvil cell (DAC), systematically investigate the electrical transport properties of both bulk FePSe<sub>3</sub> and thin layers with different thicknesses under pressure. We focus on the combined effects of external pressure and reduced dimensionality on the normal-state transport behavior and superconductivity. Experimental results show that bulk FePSe<sub>3</sub> exhibits pressure-tuned superconductivity, with the superconducting transition temperature  $T_c$  reaching a minimum around 15 GPa, accompanied by a concurrent minimum in the Hall coefficient  $R_H$ . This behavior is consistent with previous reports on bulk materials, and suggests that pressure may induce a Fermi surface reconstruction. Compared to the bulk, the thin-layer FePSe<sub>3</sub> samples show a suppressed superconducting state, characterized by a reduced  $T_c$ , and a monotonic decrease in  $R_H$  with increasing pressure. This indicates that two-dimensional confinement in thin flakes suppresses the occurrence of Fermi surface reconstruction. These findings provide key experimental evidence for understanding the pressure-driven evolution of the electronic states in FePSe<sub>3</sub>.

**Keywords:** high pressure; 2D layered materials FePSe<sub>3</sub>; thin-flake; electrical transport properties; superconductivity; hall coefficient