



铁硒基超导体的高压研究进展

程金光*, 孙建平

北京凝聚态物理国家研究中心, 中国科学院物理研究所, 北京 100190

*联系人, E-mail: jgcheng@iphy.ac.cn

收稿日期: 2020-10-19; 接受日期: 2020-11-12; 网络出版日期: 2021-03-12

国家自然科学基金(编号: 11834016, 11904391, 11921004)、中国科学院战略先导科技专项(B类)(编号: XDB25000000)和中国科学院前沿科学重点项目(编号: QYZDB-SSW-SLH013)资助项目

摘要 FeSe及其衍生化合物因表现出奇特的正常态和超导态性质, 成为近年来铁基超导领域的研究热点, 其中高压技术在揭示FeSe中的竞争电子序和调控高温超导方面发挥了重要作用. 本文概述了利用六面砧装置对FeSe基超导体的高压研究进展, 主要内容包括: (1) 通过建立FeSe的完整温度-压力相图, 观察到圆拱形的反铁磁相界并详细揭示了电子向列序、长程反铁磁序和超导相之间的竞争关系, 结合高压下的霍尔效应测试进一步表明反铁磁临界涨落对实现高温超导具有重要作用; (2) 在多个插层FeSe高温超导体中, 普遍发现高压会首先抑制超导I相, 然后在临界压力之上诱导出高温超导II相, 呈现出双拱形超导相图, 而且最高临界温度突破50 K; (3) 结合高压X射线衍射和霍尔效应测试, 指出超导II相的出现和伴随的载流子浓度提高很可能源于压力诱导的费米面重构.

关键词 FeSe, 高温超导, 高压调控, 磁性量子临界点, 超导II相

PACS: 74.70.Pq, 71.27.+a, 72.15.-v

1 引言

压力是平行于温度和化学组分决定凝聚态物质状态的重要参量之一. 对于强关联电子系统, 施加高压可以精细调控其中电荷、自旋、轨道、晶格等自由度的耦合以及各种竞争相互作用, 从而实现不同于常压下的电、磁基态并发现新奇的物理现象. 2008年发现的铁基超导体是典型的强关联电子系统^[1], 根据超导体中铁原子的配位阴离子可以划分为FeAs基和FeSe基两大类^[2], 高压研究在揭示其中竞争电子序的调控规律和非常规超导的微观机理等方面发挥的作用尤为

突出. 例如, FeAs基超导体的母体是具有反铁磁自旋密度波的关联金属, 通过施加高压可以抑制其长程反铁磁序, 在磁性量子临界点附近实现“圆拱形”的高温超导相^[3-5]. 相比于化学掺杂, 高压调控避免引入晶格无序和额外的电荷载流子, 有助于揭示反铁磁临界涨落与高温超导的内禀联系. 此外, 高压还可以提高FeAs基超导体的临界温度(T_c), 将LaFeAsO_{1-x}F_x的最佳 T_c 从26 K提高到43 K^[6], 为常压下获得更高 T_c 的超导体提供了指导^[7].

相较于FeAs基超导体, FeSe基超导体表现出更为丰富奇特的物理性质和高压调控规律, 成为近年来铁

引用格式: 程金光, 孙建平. 铁硒基超导体的高压研究进展. 中国科学: 物理学 力学 天文学, 2021, 51: 047403
Cheng J G, Sun J P. Pressure effects on the FeSe-based superconductors (in Chinese). Sci Sin-Phys Mech Astron, 2021, 51: 047403, doi: [10.1360/SSPMA-2020-0414](https://doi.org/10.1360/SSPMA-2020-0414)

基超导领域的研究热点^[8,9]. 在常压下, FeSe具有简单的准二维层状结构, 如图1所示, 随温度降低首先在 $T_s \approx 90$ K发生四方-正交结构相变, 在 T_s 以下形成具有各向异性电子结构的向列序, 然后在 $T_c \approx 8$ K进入超导态^[10,11]. 与FeAs基超导体不同, FeSe在向列相没有形成长程反铁磁序, 目前对其向列序到底起源于自旋涨落还是轨道序仍存在争议^[12-15]. 此外, FeSe的超导态也表现出诸多奇特性质, 包括高度各向异性的超导能隙^[16-24], 库珀对可能处于BCS-BEC渡越区^[25,26]等. 这些都是目前常压下研究FeSe的焦点问题.

高压调控在FeSe基超导体的研究中发挥了重要的推动作用^[27-35]. 在2008年发现FeSe超导之后, 人们首先对其超导性质开展了高压调控研究, 发现其 T_c 在高压下快速升高^[36], 8–10 GPa时可以达到最高 $T_c \approx 37$ K^[37-41], 使其进入高温超导体行列. 当采用金刚石压砧测量FeSe多晶样品的高压电输运性质时, 通常采用固体传压介质, 由于非静水压环境的影响, 使得早期的高压研究中并没有观察到压力诱导磁有序的迹象^[40]. 但是, 当采用活塞-圆筒压腔在较好静水压环境下测试高压 μ SR时, 人们发现FeSe在 ~ 1 GPa开始形成长程反铁磁序, 并且磁有序温度 T_N 随压力增加而单调升高^[42-44]. 随后, 利用活塞-圆筒压腔测试FeSe单晶样

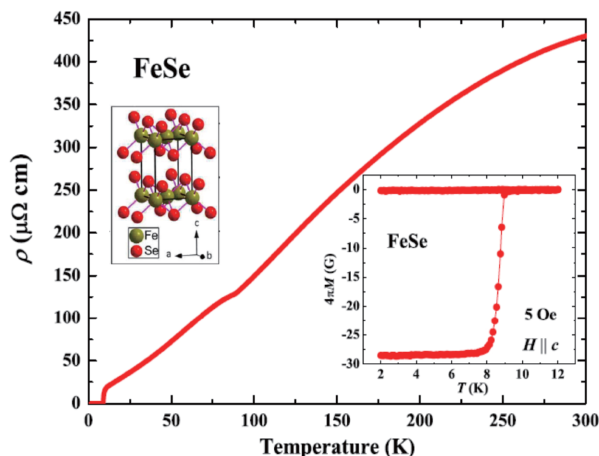


图1 (网络版彩图) 常压下, FeSe单晶电阻率的温度依赖关系. 其中, 左上插图为FeSe单晶的晶体结构; 右下插图为FeSe单晶在5 Oe磁场下的零场冷以及场冷磁化率曲线, 磁场平行于 c 轴 (摘自参考文献^[11])

Figure 1 (Color online) Temperature dependence of resistivity for FeSe single crystal at ambient pressure. The inset on the upper left displays the crystal structure of FeSe, and the inset on the lower right shows the magnetic susceptibility measured under $H = 5$ Oe magnetic field (adapted from ref. ^[11]).

品的电阻率时, 发现压力诱导的反铁磁序在 T_N 会造成明显的电阻率异常^[45], 这使得人们可以通过测试高压电阻率详细跟踪 T_N 随压力的变化规律. 然而, 由于活塞-圆筒压腔的压力范围较小(最高压强 ~ 2.5 GPa), 无法获得FeSe完整的 $T_N(P)$ 变化规律以及反铁磁序与高温超导的具体联系. 在这种情况下, 只有采用能提供10 GPa量级静水压的高压装置, 对高质量的FeSe单晶开展详细的高压电输运测量, 通过建立完整的温度-压力相图才能揭示向列序、压致反铁磁序和高温超导的具体联系. 这是我们拟解决的第一个问题.

2 立方六面砧高压低温物性测量装置

基于立方六面砧的高压-低温物性测量技术可以满足上述需求. 该技术起源于日本东京大学物性研究所, 由Mori教授等人^[46]在20世纪90年代设计并逐步发展起来. 如图2所示, 其核心部分由六个压砧构成, 通过一对对称的具有 45° 斜面的非磁导向块将六个压砧同步推动来挤压中心的固体密封块, 密封块内放置了聚四氟乙烯胶囊, 样品悬挂在充满液体传压介质(例

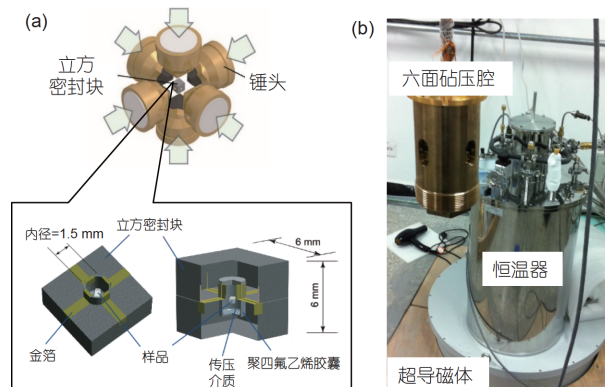


图2 (网络版彩图) (a) 立方六面砧装置的加压示意图, 其中六个压砧同步挤压中心的立方密封块, 样品放置在密封块中心充满液体传压介质的聚四氟乙烯胶囊中. (b) 中国科学院物理研究所搭建的基于微型六面砧压腔的高压低温物性测量装置, 包括六面砧高压腔、气体交换腔恒温器和超导磁体, 可实现最高压强 $P_{\max} = 15$ GPa、最低温度 $T_{\min} = 1.4$ K和最高磁场 $H_{\max} = 9$ T的综合极端条件

Figure 2 (Color online) (a) A schematic drawing of the cubic anvil cell (CAC) consisting of six anvils converging onto the cubic gasket, in which the sample was suspended in a Teflon cell filled with the liquid pressure transmitting medium. (b) A picture of the CAC apparatus established in the IOP CAS by integrating the CAC with the liquid-Helium cryostat and a superconducting magnet. This system enables us to measure physical properties under multiple extreme conditions including $P_{\max} = 15$ GPa, $T_{\min} = 1.4$ K and $H_{\max} = 9$ T.

如, 甘油)的胶囊中. 这种三轴加压和样品浸泡在液体传压介质中的方式能保证样品处于非常好的静水压环境. 为了克服传统六面砧压腔体积庞大的缺点, Uwato-ko教授等人^[47,48]在2008年设计了一种微型六面砧压腔, 在保持最高压强不变的情况下大大缩小了高压腔的体积, 使其更容易与极低温和强磁场等综合极端条件相结合. 2014年我们在中国科学院物理研究所搭建了国内第一套基于六面砧的高压低温物性测量装置, 成功将微型六面砧压腔与液氦型恒温器和室温孔超导磁体集成在一起, 实现了 $P_{\max} = 15$ GPa, $T_{\min} = 1.4$ K和 $H_{\max} = 9$ T综合极端条件下的物性测量, 包括电阻率、磁阻、霍尔电阻、交流磁化率和比热等, 成为我们开展FeSe基超导体高压研究的强有力工具.

3 FeSe单晶的完整高压相图

高压研究利用的高质量FeSe单晶样品是由美国橡树岭国家实验室的闫加强博士采用助溶剂法生长的^[49]. 我们采用活塞-圆筒压腔和六面砧压腔测试了FeSe单晶在0–15 GPa范围内的电阻率 $\rho(T)$, 详细数据可以参考文献^[50]. 通过跟踪向列序、磁有序和超导在 $\rho(T)$ 上的反常特征, 确定了不同压力下的 T_s , T_N 和 T_c 值, 建立了FeSe完整的温度-压力相图. 如图3所示, 随压力增加, 向列序逐渐被抑制, 外推至2 GPa时完全消失; 几乎同时反铁磁序开始出现, 且 T_N 逐渐升高, 表明向列序和反铁磁序之间存在竞争关系. 在向列序被逐渐压制过程中, T_c 首先缓慢升高, 但是当反铁磁序出现后 T_c 又稍微降低, 造成 T_c 在~1 GPa附近出现局部的鼓包, 当向列序完全被抑制时 T_c 出现第一次台阶式跳跃, 升至~20 K, 这表明超导与向列序和反铁磁序之间存在竞争关系; 在 T_N 保持升高的2–5 GPa区间, T_c 几乎保持不变, 进一步表明反铁磁序和超导之间存在竞争关系. 当压力升高到临界压力 $P_c \approx 6$ GPa时, 反铁磁序消失, 同时出现 T_c 的第二次台阶式跳跃, 实现最高 $T_c^{\max} = 38.5$ K, 随后 T_c 缓慢降低, 直至发生结构相变.

该相图首次揭示了FeSe中高压诱导的反铁磁序具有圆拱形 $T_N(P)$ 相界, 详细展示了向列序、反铁磁序和超导相之间的相互竞争关系, 表明高温超导是通过依次抑制向列序和反铁磁序而逐步实现的. 后续的高压研究表明, FeSe在高压下具有条纹型反铁磁结构^[44,51], 形成反铁磁序的同时也伴随着四方-正交结构相变^[52],

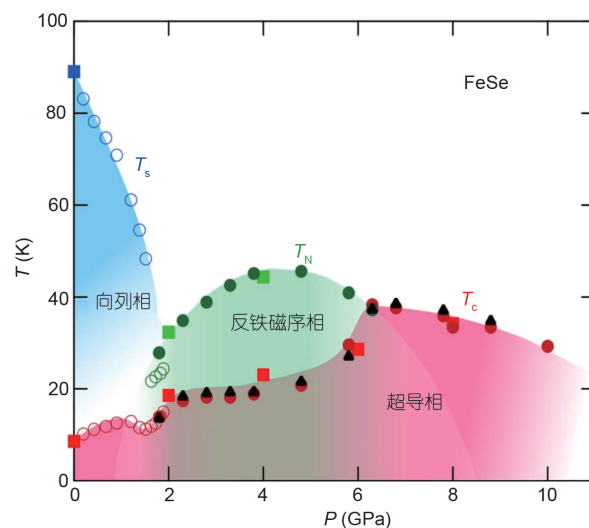


图3 (网络版彩图) FeSe的温度-压力相图. 图中 T_s , T_N 与 T_c 分别代表电子向列序、长程反铁磁序和超导转变温度 (摘自参考文献^[50])

Figure 3 (Color online) Temperature-pressure phase diagram of bulk FeSe, in which T_s , T_N , and T_c represent the transition temperatures for nematic order, long-range antiferromagnetic order and the superconductivity (adapted from ref. ^[50]).

与FeAs基超导体类似; 同时, 高温超导毗邻长程反铁磁有序相, 与FeAs基超导体体系的相图也类似, 表明反铁磁临界涨落与高温超导具有紧密联系^[53,54]. 这引起了我们对统一理解铁基高温超导机理问题的思考.

大多数FeAs基高温超导体的能带结构包含位于布里渊区中心的空穴型费米面和布里渊区顶角的电子型费米面, 因此, 空穴和电子费米面之间的散射被认为是铁基超导电子配对的重要机制^[55,56]. 但是, 在常压下实现的FeSe基高温超导体中, 包括 $A_x\text{Fe}_{2-y}\text{Se}_2$ ($A = \text{K}, \text{Cs}, \text{Rb}, \text{Tl}$), $(\text{Li}_{1-x}\text{Fe}_x)\text{OHFeSe}$, 单层FeSe/SrTiO₃薄膜只有电子型费米面^[57], 空穴型费米面的缺失使得费米面嵌套机制不再适用, 这对统一理解铁基超导机理提出了很大挑战, 也成为本领域的关键问题之一^[20].

由于在常压下FeSe是兼有电子和空穴型费米面的补偿半金属^[58–61], 而施加高压原则上没有引入额外的电荷载流子. 那么FeSe在高压下实现近40 K高温超导时的电子结构是怎样的呢? 是否不同于常压下电子掺杂的FeSe基高温超导体? 这是我们拟解决的第二个问题. 然而, 常压下直接探测电子结构信息的角分辨光电子能谱无法应用在高压环境下, 而且高压下的量子振荡测量也非常困难. 在这种情况下, 我们选择测量高

压下的霍尔效应, 期望获得高压下对电运输起主导作用的载流子信息.

4 FeSe单晶的高压电子相图

我们采用六面砧压腔在不同压力下测试了不同温度的霍尔电阻 $\rho_{xy}(H)$, 详细数据可参考文献[62]. 2 GPa以下的 $\rho_{xy}(H)$ 与常压下的行为类似, 即高温时呈线性, 其斜率(即霍尔系数)随着温度降低出现正负变号, 这对应于FeSe兼有电子和空穴费米面的半金属特性; 当温度降至40 K时 $\rho_{xy}(H)$ 呈现非线性行为, 而且低温时斜率变为负值, 表明电子型载流子主导低温的电输运行. 这主要归因于向列序导致的费米面重构, 出现了一个具有高迁移率的电子型费米面^[63]. 当压力升至3 GPa以上时, $\rho_{xy}(H)$ 仍基本保持线性, 但在整个温区均显示正的斜率, 没有出现随温度变号的现象, 这表明高压下空穴型载流子主导了FeSe的电输运性质. 此外, 在磁有序消失的临界压力 $P_c \approx 6$ GPa附近, $\rho_{xy}(H)$ 随温度降低显著升高; 当 $P > P_c$ 时, $\rho_{xy}(H)$ 逐渐减小, 而且随温度降低而增强的趋势也变弱.

为了定量研究霍尔效应在高压下的演化, 我们通过线性拟合 $\rho_{xy}(H)$ 得到了零场极限下的霍尔系数 $R_H = d\rho_{xy}/dH$. 将不同压力下的 $R_H(T)$ 数据叠加到图3的温度-压力相图, 我们可以得到FeSe的高压电子相图(图4), 该相图提供了FeSe的电子结构在高压下演化的重要信息. 如图4所示, 当 $P < 2$ GPa时, FeSe的费米面在形成向列序后($T < T_s$)发生明显重构, 造成低温正常态的电输运性质由电子型载流子主导, 与常压下的角分辨光电子能谱、量子振荡等测量的结果一致^[58,59,64,65]; 当 $P > 2$ GPa时, 长程反铁磁序出现, 霍尔电阻在整个温区都变为正值, 此时正常态的电输运性质变成由空穴型载流子主导, 特别是在 $P_c \approx 6$ GPa附近, 此时反铁磁序恰好消失而且 T_c 最高, R_H 显著增强, 提高了一个数量级以上. 由于 P_c 附近正常态的顺磁区不会出现载流子数的显著降低, 因此 R_H 的增强主要归因于反铁磁临界涨落的增强而造成载流子迁移率的降低. 在重费米子体系的反铁磁量子临界点附近也观察到类似现象^[66], 这进一步表明FeSe在高压下实现的高温超导与反铁磁临界涨落具有密切联系^[67].

通过高压下霍尔效应研究, 我们首次确认FeSe在高压下实现近40 K最佳超导时的正常态具有空穴主导

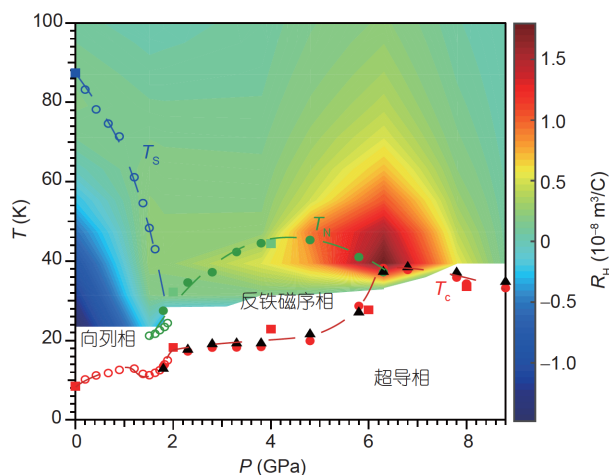


图4 (网络版彩图) FeSe的高压电子相图, 其中等高线彩图为霍尔系数 R_H . 通过高压下的霍尔电阻测试, 将低场范围内的霍尔电阻进行线性拟合得到每个温度以及压力下零场极限的霍尔系数 $R_H \equiv d\rho_{xy}/dH$ (摘自参考文献[62])

Figure 4 (Color online) The electronic phase diagram of FeSe under high pressures. The contour plot shows the Hall coefficient R_H , which is defined as the field derivative of $\rho_{xy}(H)$, $R_H \equiv d\rho_{xy}/dH$, at the zero-field limit at each temperature and pressure (adapted from ref. [62]).

的载流子, 即其费米面拓扑结构与前面提到的多种重电子掺杂型FeSe基高温超导体截然不同. 第一性原理计算表明FeSe在高压下仍然存在电子型费米面并与空穴型费米面共存, 与FeAs基高温超导体类似, 支持电子-空穴散射和费米面嵌套机制, 这有助于统一理解铁基高温超导机理^[58].

5 插层FeSe高温超导体的压致超导II相

前面提到, 电子掺杂可以大幅提高插层FeSe基超导体的 T_c , 但目前的最高 T_c 仍低于50 K, 过掺杂会使其 T_c 趋于饱和甚至转变为绝缘体^[68]. 对于重电子掺杂的插层FeSe高温超导体, 能否通过其他途径进一步提高 T_c 是值得探索的课题. 早在2012年, 赵忠贤院士团队^[69]对 $A_y\text{Fe}_{2-x}\text{Se}_2$ ($A = \text{K}, \text{Tl}, \text{Rb}$)系列样品进行了详细的高压研究, 发现压力会首先抑制高温超导I相(SC-I), 并在 $P_c \approx 10$ GPa诱导出第二个高温超导相(SC-II), 其最佳 T_c^{onset} 达到约48.7 K, 比SC-I相的 T_c 提高了近15 K, 这表明对插层FeSe施加物理压力是进一步提高其 T_c 的有效途径. 然而, 由于 $A_y\text{Fe}_{2-x}\text{Se}_2$ 超导体存在内禀相分离^[70], 即超导相与铁空位有序的反铁磁绝缘相 $A_2\text{Fe}_4\text{Se}_5$ 总是共生的, 而且 $A_2\text{Fe}_4\text{Se}_5$ 的反铁磁序恰好

P_c 附近消失^[71], 阻碍了人们对SC-II相的深入认知. 另外, 由于金刚石压砧进行高压电输运测量时采用固体传压介质而造成的非静水环境, 不利于获得材料的本征压力效应, 使得不同实验组对 $A_y\text{Fe}_{2-x}\text{Se}_2$ 高压测量结果出现较大差异^[72].

2015年, 赵忠贤院士和董晓莉研究员团队^[73,74]利用独特的离子交换水热反应法成功合成了高质量的 $(\text{Li}_{1-x}\text{Fe}_x)\text{OHFeSe}$ 单晶样品, 常压下其 T_c 最高可达42 K, 而且不存在 $A_y\text{Fe}_{2-x}\text{Se}_2$ 中的相分离问题, 成为研究高压诱导SC-II相的理想体系. 在赵忠贤老师的推动下, 我们采用六面砧装置对 $(\text{Li}_{1-x}\text{Fe}_x)\text{OHFeSe}$ 单晶开展了详细的高压调控研究. 我们选择接近最佳 $T_c \approx 42$ K的 $(\text{Li}_{0.84}\text{Fe}_{0.16})\text{OHFe}_{0.98}\text{Se}$ 样品进行了高压下的电阻率 $\rho(T)$ 和交流磁化率 $\chi'(T)$ 测试, 详细数据可参考文献^[75]. 我们发现其正常态 $\rho(T)$ 随压力增加首先显著减小, 在6.5 GPa以上则变化很弱, 同时 $\rho(T)$ 的温度依赖关系也发生明显改变. 低温下, T_c 随压力增加呈现出非单调性变化, 即随压力逐渐增加, T_c 首先降低, 超导转变也逐渐变宽, 5 GPa时 T_c^{onset} 降至 ~ 13 K, 而 T_c^{zero} 降到1.4 K以下. 然而, 当压力增加到6.5 GPa时, 超导转变重新出现, T_c^{onset} 升至 ~ 31 K, T_c^{zero} 升至 ~ 12 K, 表明在 $(\text{Li}_{0.84}\text{Fe}_{0.16})\text{OHFe}_{0.98}\text{Se}$ 中出现高压诱导的SC-II相. 随着压力增加, T_c^{onset} 与 T_c^{zero} 又逐渐升高, 超导转变越来越窄, 在12.5 GPa时分别达到了52.7与46.2 K, 这是首次在FeSe基块体超导材料中突破50 K的超导转变. 基于上述实验结果, 我们建立了 $(\text{Li}_{0.84}\text{Fe}_{0.16})\text{OHFe}_{0.98}\text{Se}$ 单晶的温度-压力相图.

如图5所示, 高压首先抑制SC-I相, 然后在 $P_c \approx 5$ GPa诱导SC-II相, T_c 随压力逐渐升高至饱和, 呈现出双拱形相图. 此外, 我们还测试了常压下较低 $T_c = 28$ K样品的高压电阻率, 也观察到类似的压致SC-II相. 与之前 $A_y\text{Fe}_{2-x}\text{Se}_2$ 的高压结果相比, 我们在 $(\text{Li}_{0.84}\text{Fe}_{0.16})\text{OHFe}_{0.98}\text{Se}$ 单晶中观察到的SC-II相的 T_c^{onset} 首次突破了50 K, 成功实现零电阻, 而且超导转变较窄; 另外, SC-II存在的压力区间较大. 这些差异应归因于采用了高质量的单晶样品和能提供良好静水压的六面砧压腔. 这也使得我们可以对正常态 $\rho(T)$ 数据进行更深入分析, 从而获得更多信息. 如图5所示, SC-I相的正常态具有费米液体行为($\rho \propto T^\alpha$, $\alpha \approx 2$), 而SC-II相的正常态则呈现出非费米液体行为($\alpha \leq 1.5$), 甚至表现出准线性的温度依赖关系, 跟最佳掺杂的铜氧化物超导体和FeAs基

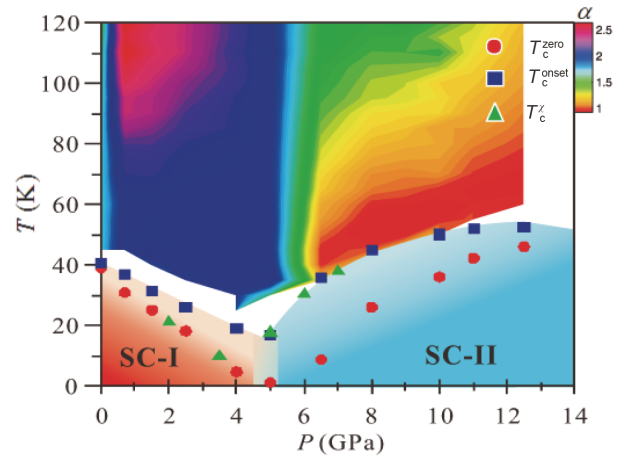


图5 (网络版彩图) $(\text{Li}_{0.84}\text{Fe}_{0.16})\text{OHFe}_{0.98}\text{Se}$ 的高压相图. 其中超导转变温度 T_c^{zero} 和 T_c^{onset} 是根据高压电阻率数据确定的, T_c^χ 是根据高压磁化率数据确定的; 等值线彩图显示的是12.5 GPa范围内的正常态电阻率的温度指数 $\alpha \equiv \text{dlog}(\rho - \rho_0)/\text{dlog}T$ (摘自参考文献^[75])

Figure 5 (Color online) Temperature-pressure phase diagram of $(\text{Li}_{0.84}\text{Fe}_{0.16})\text{OHFe}_{0.98}\text{Se}$ single crystal. The superconducting transition temperatures T_c^{zero} and T_c^{onset} are determined from the high-pressure resistivity data, while T_c^χ from the ac magnetic susceptibility data. The contour color plot shows the temperature exponent α of the normal-state resistivity up to 12.5 GPa (adapted from ref. ^[75]).

超导体类似, 意味着具有非常规超导配对机理^[76-78].

为进一步获得SC-II相非费米液体正常态的信息, 我们还测试了 $(\text{Li}_{0.84}\text{Fe}_{0.16})\text{OHFe}_{0.98}\text{Se}$ 在不同压力下正常态的霍尔电阻 $\rho_{xy}(H)$. 所有的 $\rho_{xy}(H)$ 呈线性, 并且具有负的斜率, 表明SC-I和SC-II相都是电子型载流子主导的. 随压力增加, 霍尔系数 $|R_H \equiv \text{d}\rho_{xy}/\text{d}H|$ 首先升高然后在 P_c 以上迅速降低. 在单带模型的假定下, 我们可以根据 $n_e = -1/(R_H e)$ 估计电子浓度, 发现SC-II相的 n_e 显著提升, 而且与 $T_c(P)$ 的变化规律一致, 这表明高压下SC-II相的出现和 n_e 的增加密切相关. 由于高压X射线衍射排除了 P_c 附近发生结构相变的可能, 高压诱导的SC-II相和伴随的载流子浓度提高应该归因于费米面重构.

由于 $(\text{Li}, \text{Fe})\text{OH}$ 插层具有反铁磁序, 其在高压下的行为尚不清楚. 为了避免磁性插层的影响, 同时进一步研究高压诱导的SC-II相是否为插层FeSe基超导材料的普遍现象, 我们随后又对液氨和锂离子共插层的 $\text{Li}_{0.36}(\text{NH}_3)_y\text{Fe}_2\text{Se}_2$ 单晶^[79]和有机分子插层的 $(\text{CTA})_{0.3}\text{FeSe}$ 单晶^[80]开展了高压研究^[81,82]. 我们发现这两个体系也会在某一临界压力 P_c 出现SC-II相, 而且 $\text{Li}_{0.36}(\text{NH}_3)_y\text{Fe}_2\text{Se}_2$ 的最高 T_c 可以达到55 K, 比SC-I相的初始 T_c 提高了10 K以上, 为进一步提高FeSe基超导体的 T_c

提供了新思路. 由于SC-II相的最高 T_c 与SC-I相的初始 T_c 具有正相关性, 对最优化电子掺杂的插层FeSe开展高压调控, 有可能实现最佳 T_c .

6 结论与展望

高压技术是揭示非常规超导体中竞争电子序的复杂关系、提高超导转变温度的重要调控手段, 在强关联电子体系的研究中起到非常重要的作用. 基于六面砷压腔的大腔体高压低温测量技术能够提供10 GPa量级的好静水压环境, 对获得材料的内禀压力效应、大范围内调控强关联电子体系的反常电子行为具有独特优势. 正是借助于六面砷压腔的这一特点, 使得我们能够对FeSe单晶的高压行为进行较全面的研究. 一方面, 通过绘制其温度-压力相图, 具体阐明了向列序、反铁磁序和超导相的相互竞争关系, 揭示了高温超导是通过逐步抑制电子向列序和反铁磁序而实现的. 特别是, 最佳超导紧邻长程反铁磁序的现象与其他铁基超导非常类似, 提供了统一理解铁基超导机制的重要线索. 另一方面, 通过探测高压下的电子结构信息, 提供了压力诱导的正常态费米面重构和高压下存在空穴型费米面的证据, 并且揭示了反铁磁临界涨落对实现高温超导具有重要作用. 这些高压实验结果对深入理解FeSe单晶的独特性质、统一理解FeSe基和FeAs基高温超导机理提供了重要实验依据.

通过在FeSe层间插入(Li, Fe)OH或者 $\text{Li}_{0.36}(\text{NH}_3)_y$ 可以实现对FeSe超导层的电子掺杂, 从而分别实现 T_c 高达42和44 K的高温SC-I相^[73,74,79]. 我们对这两种插层FeSe高温超导材料开展了高压调控研究, 观察到高压会首先抑制SC-I相, 然后在 $P_c = 2\text{--}5$ GPa诱导出SC-II相, 呈现出双拱形超导相图, 而且SC-II相的最高 T_c 可以达到52和55 K. 对电输运性质的分析表明, SC-I和SC-II相的正常态分别对应费米液体和非费米液体, 并且SC-II相的出现还伴随电子载流子浓度的同步升高.

由于施加物理压力并没有引入额外的载流子, 上述现象应该是由费米面附近的有效载流子浓度提高造成的. Phan等人^[60]利用角分辨光电子能谱研究了面内应力对FeSe费米面大小的影响, 他们通过选择SrTiO₃和CaF₂衬底分别对FeSe薄膜施加面内拉伸和压缩应力, 并与无应力的块体FeSe进行对比. 他们发现CaF₂衬底上生长的具有压缩应力的FeSe的空穴和电子费米面比块体FeSe大很多, 而具有拉伸应力的FeSe的费米面则减小. 类似的, 在这些插层FeSe中, 在 P_c 以上对FeSe超导层的面内压缩可能会造成突然的费米面重构, 或者Lifshitz相变, 导致费米面增大. 虽然高压没有造成晶体结构相变, 但是会有效改变FeSe层内的Se-Fe-Se键角或者Se离子高度, 这些可能是调控费米面大小的关键因素^[83,84]. 因此, 有必要开展高精度的高压结构测试和分析, 获得结构参数随压力的变化规律, 这将有助于我们深入认识插层FeSe高温超导体中出现的SC-II相.

在过掺杂的 $\text{LaFeAsO}_{1-x}\text{H}_x$ ($0 \leq x \leq 0.53$)和 $\text{LaFeAsO}_{1-x}\text{F}_x$ ($0 \leq x \leq 0.75$)中也观察到两个超导相^[85,86]: 前者的两个超导相分别毗邻两种不同类型的反铁磁有序态; 而后的SC-II相则与四重旋转对称性破缺的结构相变有关, 与低能磁涨落无关. 对于插层FeSe高压下出现的SC-II相, 是否伴随反铁磁涨落或者结构不稳定性是值得探索的课题. 此外, 在其他非常规超导体系中也观察到两个超导相的现象. 例如, 对重费米子 $\text{CeCu}_2\text{--}(\text{Si}_{1-x}\text{Ge}_x)_2$ 体系施加高压可以诱导出两个超导相, 其分别对应长程反铁磁序的量子临界点和化合价态的不稳定性^[87]. 因此, 在非常规超导体系中出现两个超导相往往暗示该体系蕴涵着丰富的物理内涵. 最近对 $\text{A}_x\text{Fe}_{2-y}\text{Se}_2$ 的理论研究认为, 由于费米面拓扑性质的改变, SC-I和SC-II相可能具有不同的配对对称性^[88]. 总之, 目前还缺乏对插层FeSe基高温超导体在高压下出现两个超导相的深入认识, 进一步探究SC-II相的物理机制并试图提高 T_c 具有重要的科学意义.

致谢 感谢美国橡树岭国家实验室的闫加强博士、日本东京大学的Uwatoko教授和Shibauchi教授、中国科学院物理研究所董晓莉研究员和赵忠贤院士、中国人民大学雷和畅教授、中国科学技术大学陈仙辉院士、清华大学张广铭教授和美国密苏里大学的D. J. Singh教授在研究FeSe基超导体时提供的合作.

参考文献

- 1 Kamihara Y, Watanabe T, Hirano M, et al. Iron-based layered superconductor $\text{La}[\text{O}_{1-x}\text{F}_x]\text{FeAs}$ ($x = 0.05\text{--}0.12$) with $T_c = 26$ K. *J Am Chem Soc*, 2008, 130: 3296–3297
- 2 Johnston D C. The puzzle of high temperature superconductivity in layered iron pnictides and chalcogenides. *Adv Phys*, 2010, 59: 803–1061, arXiv: 1005.4392
- 3 Chu C W, Lorenz B. High pressure studies on Fe-pnictide superconductors. *Physica C-Supercond*, 2009, 469: 385–395, arXiv: 0902.0809
- 4 Canfield P C, Bud'ko S L, Ni N, et al. Structural, magnetic and superconducting phase transitions in CaFe_2As_2 under ambient and applied pressure. *Physica C-Supercond*, 2009, 469: 404–412, arXiv: 0901.4672
- 5 Sefat A S. Pressure effects on two superconducting iron-based families. *Rep Prog Phys*, 2011, 74: 124502
- 6 Takahashi H, Igawa K, Arii K, et al. ChemInform abstract: Superconductivity at 43 K in an iron-based layered compound $\text{LaO}_{1-x}\text{F}_x\text{FeAs}$. *ChemInform*, 2008, 39
- 7 Stewart G R. Superconductivity in iron compounds. *Rev Mod Phys*, 2011, 83: 1589–1652
- 8 Chang C C, Chen T K, Lee W C, et al. Superconductivity in Fe-chalcogenides. *Physica C*, 2015, 514: 423–434
- 9 Shibauchi T, Hanaguri T, Matsuda Y. Exotic superconducting states in FeSe-based materials. *J Phys Soc Jpn*, 2020, 89: 102002
- 10 Hsu F C, Luo J Y, Yeh K W, et al. Superconductivity in the PbO-type structure $\alpha\text{-FeSe}$. *Proc Natl Acad Sci USA*, 2008, 105: 14262–14264
- 11 Sun Y, Pyon S, Tamegai T, et al. Critical current density, vortex dynamics, and phase diagram of single-crystal FeSe. *Phys Rev B*, 2015, 92: 144509
- 12 Bohmer A, Arai T, Hardy F, et al. Origin of the tetragonal-to-orthorhombic phase transition in FeSe: A combined thermodynamic and NMR study of nematicity. *Phys Rev Lett*, 2015, 114: 027001
- 13 Fernandes R M, Chubukov A V, Schmalian J. What drives nematic order in iron-based superconductors? *Nat Phys*, 2014, 10: 97–104
- 14 Wang Q, Shen Y, Pan B, et al. Strong interplay between stripe spin fluctuations, nematicity and superconductivity in FeSe. *Nat Mater*, 2016, 15: 159–163
- 15 Baek S H, Efremov D V, Ok J M, et al. Orbital-driven nematicity in FeSe. *Nat Mater*, 2015, 14: 210–214
- 16 Jiao L, Huang C L, Rossler S, et al. Superconducting gap structure of FeSe. *Sci Rep*, 2017, 7: 44024
- 17 Khasanov R, Bendele M, Amato A, et al. Evolution of two-gap behavior of the superconductor FeSe_{1-x} . *Phys Rev Lett*, 2010, 104: 087004
- 18 Khasanov R, Conder K, Pomjakushina E, et al. Evidence of nodeless superconductivity in $\text{FeSe}_{0.85}$ from a muon-spin-rotation study of the in-plane magnetic penetration depth. *Phys Rev B*, 2008, 78: 220510
- 19 Kotegawa H, Masaki S, Awai Y, et al. Evidence for unconventional superconductivity in arsenic-free iron-based superconductor FeSe: A ^{77}Se -NMR study. *J Phys Soc Jpn*, 2008, 77: 113703
- 20 Kreisel A, Hirschfeld P J, Andersen B M. On the remarkable superconductivity of FeSe and its close cousins. *Symmetry*, 2020, 12: 1402
- 21 Naidyuk Y G, Kvitnitskaya O E, Gamayunova N V, et al. Superconducting gaps in FeSe studied by soft point-contact Andreev reflection spectroscopy. *Phys Rev B*, 2017, 96: 094517
- 22 Zhang Y, Lee J, Moore R, et al. Superconducting gap anisotropy in monolayer FeSe thin film. *Phys Rev Lett*, 2016, 117: 117001
- 23 Chen G Y, Zhu X, Yang H, et al. Highly anisotropic superconducting gaps and possible evidence of antiferromagnetic order in FeSe single crystals. *Phys Rev B*, 2017, 96: 064524
- 24 Liu D, Li C, Huang J, et al. Orbital origin of extremely anisotropic superconducting gap in nematic phase of FeSe superconductor. *Phys Rev X*, 2018, 8: 031033, arXiv: 1802.02940
- 25 Kasahara S, Watashige T, Hanaguri T, et al. Field-induced superconducting phase of FeSe in the BCS-BEC cross-over. *Proc Natl Acad Sci USA*, 2014, 111: 16309–16313
- 26 Watashige T, Arsenijević S, Yamashita T, et al. Quasiparticle excitations in the superconducting state of FeSe probed by thermal hall conductivity in the vicinity of the BCS-BEC crossover. *J Phys Soc Jpn*, 2017, 86: 014707
- 27 Bendele M, Pomjakushina E, Conder K, et al. Pressure effects in the iron chalcogenides. *J Supercond Nov Magn*, 2013, 27: 965–968
- 28 Bohmer A E, Kreisel A. Nematicity, magnetism and superconductivity in FeSe. *J Phys-Condens Matter*, 2018, 30: 023001
- 29 Takahashi H, Tomita T, Takahashi H, et al. High-pressure studies on T_c and crystal structure of iron chalcogenide superconductors. *Sci Tech Adv Mater*, 2012, 13: 054401

- 30 Chen J M, Haw S C, Lee J M, et al. Pressure dependence of the electronic structure and spin state in $\text{Fe}_{1.01}\text{Se}$ superconductors probed by X-ray absorption and X-ray emission spectroscopy. *Phys Rev B*, 2011, 84: 125117
- 31 Kang J H, Jung S G, Lee S, et al. Pressure dependence of upper critical fields in FeSe single crystals. *Supercond Sci Technol*, 2016, 29: 035007
- 32 Lebert B W, Balédent V, Toulemonde P, et al. Emergent high-spin state above 7 GPa in superconducting FeSe. *Phys Rev B*, 2018, 97: 180503
- 33 Lu H Y, Wang N N, Wei M J, et al. The effects of pressure on the structural, electronic, and lattice dynamical properties of FeSe superconductor. *J Low Temp Phys*, 2014, 178: 355–366
- 34 Mandal S, Cohen R E, Haule K. Strong pressure-dependent electron-phonon coupling in FeSe. *Phys Rev B*, 2014, 89: 220502
- 35 Millican J N, Phelan D, Thomas E L, et al. Pressure-induced effects on the structure of the FeSe superconductor. *Solid State Commun*, 2009, 149: 707–710, arXiv: 0902.0971
- 36 Mizuguchi Y, Tomioka F, Tsuda S, et al. Superconductivity at 27 K in tetragonal FeSe under high pressure. *Appl Phys Lett*, 2008, 93: 152505
- 37 Miyoshi K, Mutou E, Morishita K, et al. Pressure dependence of superconductivity in FeSe studied by DC magnetic measurements. *J Phys-Conf Ser*, 2012, 400: 022075
- 38 Miyoshi K, Takaichi Y, Mutou E, et al. Anomalous pressure dependence of the superconducting transition temperature in FeSe_{1-x} studied by DC magnetic measurements. *J Phys Soc Jpn*, 2009, 78: 093703
- 39 Okabe H, Takeshita N, Horigane K, et al. Pressure-induced high- T_c superconducting phase in FeSe: Correlation between anion height and T_c . *Phys Rev B*, 2010, 81: 205119
- 40 Medvedev S, McQueen T M, Troyan I A, et al. Electronic and magnetic phase diagram of $\beta\text{-Fe}_{1.01}\text{Se}$ with superconductivity at 36.7 K under pressure. *Nat Mater*, 2009, 8: 630–633
- 41 Masaki S, Kotegawa H, Hara Y, et al. Precise pressure dependence of the superconducting transition temperature of FeSe: Resistivity and ^{77}Se -NMR study. *J Phys Soc Jpn*, 2009, 78: 063704
- 42 Bendele M, Amato A, Conder K, et al. Pressure induced static magnetic order in superconducting FeSe_{1-x} . *Phys Rev Lett*, 2010, 104: 087003
- 43 Bendele M, Ichsanow A, Pashkevich Y, et al. Coexistence of superconductivity and magnetism in FeSe_{1-x} under pressure. *Phys Rev B*, 2012, 85: 064517
- 44 Khasanov R, Guguchia Z, Amato A, et al. Pressure-induced magnetic order in FeSe: A muon spin rotation study. *Phys Rev B*, 2017, 95: 180504
- 45 Terashima T, Kikugawa N, Kasahara S, et al. Pressure-induced antiferromagnetic transition and phase diagram in FeSe. *J Phys Soc Jpn*, 2015, 84: 063701
- 46 Mori N, Takahashi H, Takeshita N. Low-temperature and high-pressure apparatus developed at ISSP, University of Tokyo. *High Pressure Res*, 2004, 24: 225–232
- 47 Uwatoko Y, Matsubayashi K, Matsumoto T, et al. Development of palm cubic anvil apparatus for low temperature physics. *Rev High Pressure Sci Tech*, 2008, 18: 230–236
- 48 Matsubayashi K, Hisada A, Kawae T, et al. Recent progress in multi-extreme condition by miniature high-pressure cell. *Rev High Pressure Sci Tech*, 2012, 22: 206–213
- 49 Yan J Q, Sales B C, Susner M A, et al. Flux growth in a horizontal configuration: An analog to vapor transport growth. *Phys Rev Mater*, 2017, 1: 023402
- 50 Sun J P, Matsuura K, Ye G Z, et al. Dome-shaped magnetic order competing with high-temperature superconductivity at high pressures in FeSe. *Nat Commun*, 2016, 7: 12146
- 51 Wang P, Sun S, Cui Y, et al. Pressure induced stripe-order antiferromagnetism and first-order phase transition in FeSe. *Phys Rev Lett*, 2016, 117: 237001
- 52 Kothapalli K, Böhmer A E, Jayasekara W T, et al. Strong cooperative coupling of pressure-induced magnetic order and nematicity in FeSe. *Nat Commun*, 2016, 7: 12728
- 53 Khasanov R, Fernandes R M, Simutis G, et al. Magnetic tricritical point and nematicity in FeSe under pressure. *Phys Rev B*, 2018, 97: 224510
- 54 Ushakov A V, Shorikov A O, Anisimov V I, et al. Suppression of magnetism under pressure in FeS: A DFT+DMFT study. *Phys Rev B*, 2017, 95: 205116
- 55 Sun J P, Shahi P, Zhou H X, et al. Effect of high pressure on the intercalated FeSe high- T_c superconductors (in Chinese). *Acta Phys Sin*, 2018, 67: 207404 [孙建平, Shahi P, 周花雪, 等. 插层FeSe 高温超导体的高压研究进展. *物理学报*, 2018, 67: 207404]
- 56 Singh D J, Du M H. Density functional study of $\text{LaFeAsO}_{1-x}\text{F}_x$: A low carrier density superconductor near itinerant magnetism. *Phys Rev Lett*,

- 2008, 100: 237003
- 57 Zhao L, Liang A, Yuan D, et al. Common electronic origin of superconductivity in (Li, Fe)OHFeSe bulk superconductor and single-layer FeSe/SrTiO₃ films. *Nat Commun*, 2016, 7: 10608
- 58 Nakayama K, Miyata Y, Phan G, et al. Reconstruction of band structure induced by electronic nematicity in an FeSe superconductor. *Phys Rev Lett*, 2014, 113: 237001
- 59 Kushnirenko Y S, Kordyuk A A, Fedorov A V, et al. Anomalous temperature evolution of the electronic structure of FeSe. *Phys Rev B*, 2017, 96: 100504
- 60 Phan G N, Nakayama K, Sugawara K, et al. Effects of strain on the electronic structure, superconductivity, and nematicity in FeSe studied by angle-resolved photoemission spectroscopy. *Phys Rev B*, 2017, 95: 224507
- 61 Pustovit Y V, Kordyuk A A. Metamorphoses of electronic structure of FeSe-based superconductors (Review Article). *Low Temp Phys*, 2016, 42: 995–1007
- 62 Sun J P, Ye G Z, Shahi P, et al. High- T_c superconductivity in FeSe at high pressure: Dominant hole carriers and enhanced spin fluctuations. *Phys Rev Lett*, 2017, 118: 147004
- 63 Watson M, Yamashita T, Kasahara S, et al. Dichotomy between the hole and electron behavior in multiband superconductor FeSe probed by ultrahigh magnetic fields. *Phys Rev Lett*, 2015, 115: 027006
- 64 Terashima T, Kikugawa N, Kiswandhi A, et al. Anomalous Fermi surface in FeSe seen by Shubnikov-de Haas oscillation measurements. *Phys Rev B*, 2014, 90: 144517
- 65 Terashima T, Kikugawa N, Kiswandhi A, et al. Fermi surface reconstruction in FeSe under high pressure. *Phys Rev B*, 2016, 93: 094505
- 66 Nakajima Y, Shishido H, Nakai H, et al. Non-fermi liquid behavior in the magnetotransport of CeMIn₅(M: Co and Rh): Striking similarity between quasi two-dimensional heavy fermion and high- T_c cuprates. *J Phys Soc Jpn*, 2007, 76: 024703
- 67 Sun J P. Study on the FeSe-Based Superconductors Under High Pressure (in Chinese). Dissertation for Doctoral Degree. Beijing: University of Chinese Academy of Sciences, 2018 [孙建平. FeSe基超导体的高压研究. 博士学位论文. 北京: 中国科学院大学, 2018]
- 68 Lei B, Xiang Z J, Lu X F, et al. Gate-tuned superconductor-insulator transition in (Li, Fe)OHFeSe. *Phys Rev B*, 2016, 93: 060501
- 69 Sun L, Chen X J, Guo J, et al. Re-emerging superconductivity at 48 kelvin in iron chalcogenides. *Nature*, 2012, 483: 67–69, arXiv: 1110.2600
- 70 Dagotto E. *Colloquium: The unexpected properties of alkali metal iron selenide superconductors*. *Rev Mod Phys*, 2013, 85: 849–867
- 71 Ye F, Bao W, Chi S X, et al. High-pressure single-crystal neutron scattering study of magnetic and Fe vacancy orders in (Tl, Rb)₂Fe₄Se₅ superconductor. *Chin Phys Lett*, 2014, 31: 127401
- 72 Fujita H, Kagayama T, Shimizu K, et al. Pressure dependence of superconductive transition temperature on K_xFe_{2-y}Se₂. *J Phys-Conf Ser*, 2015, 592: 012070
- 73 Dong X, Zhou H, Yang H, et al. Phase diagram of (Li_{1-x}Fe_x)OHFeSe: A bridge between iron selenide and arsenide superconductors. *J Am Chem Soc*, 2015, 137: 66–69
- 74 Dong X, Jin K, Yuan D, et al. (Li_{0.84}Fe_{0.16})OHFe_{0.98}Se superconductor: Ion-exchange synthesis of large single-crystal and highly two-dimensional electron properties. *Phys Rev B*, 2015, 92: 064515
- 75 Sun J P, Shahi P, Zhou H X, et al. Reemergence of high- T_c superconductivity in the (Li_{1-x}Fe_x)OHFe_{1-y}Se under high pressure. *Nat Commun*, 2018, 9: 380
- 76 Barisic N, Chan M K, Li Y, et al. Universal sheet resistance and revised phase diagram of the cuprate high-temperature superconductors. *Proc Natl Acad Sci USA*, 2013, 110: 12235–12240
- 77 Kasahara S, Shibauchi T, Hashimoto K, et al. Evolution from non-fermi- to fermi-liquid transport via isovalent doping in BaFe₂(As_{1-x}P_x)₂ superconductors. *Phys Rev B*, 2010, 81: 184519
- 78 Nakai Y, Iye T, Kitagawa S, et al. Unconventional superconductivity and antiferromagnetic quantum critical behavior in the isovalent-doped BaFe₂(As_{1-x}P_x)₂. *Phys Rev Lett*, 2010, 105: 107003
- 79 Sun S, Wang S, Yu R, et al. Extreme anisotropy and anomalous transport properties of heavily electron doped Li_x(NH₃)_yFe₂Se₂ single crystals. *Phys Rev B*, 2017, 96: 064512
- 80 Shi M Z, Wang N Z, Lei B, et al. Organic-ion-intercalated FeSe-based superconductors. *Phys Rev Mater*, 2018, 2: 074801
- 81 Shahi P, Sun J P, Wang S H, et al. High- T_c superconductivity up to 55 K under high pressure in a heavily electron doped Li_{0.36}(NH₃)_yFe₂Se₂ single crystal. *Phys Rev B*, 2018, 97: 020508

- 82 Sun J P, Shi M Z, Lei B, et al. Pressure-induced second high- T_c superconducting phase in the organic-ion-intercalated $(\text{CTA})_{0.3}\text{FeSe}$ single crystal. *EPL*, 2020, 130: 67004
- 83 Song C L, Zhang H M, Zhong Y, et al. Observation of double-dome superconductivity in potassium-doped FeSe thin films. *Phys Rev Lett*, 2016, 116: 157001
- 84 Shi X, Han Z Q, Peng X L, et al. Enhanced superconductivity accompanying a Lifshitz transition in electron-doped FeSe monolayer. *Nat Commun*, 2017, 8: 14988
- 85 Hiraishi M, Iimura S, Kojima K M, et al. Bipartite magnetic parent phases in the iron oxypnictide superconductor. *Nat Phys*, 2014, 10: 300–303
- 86 Iimura S, Matsuishi S, Sato H, et al. Two-dome structure in electron-doped iron arsenide superconductors. *Nat Commun*, 2012, 3: 943
- 87 Yuan H Q, Grosche F M, Deppe M, et al. Observation of two distinct superconducting phases in CeCu_2Si_2 . *Science*, 2003, 302: 2104–2107
- 88 Das T, Balatsky A V. Origin of pressure induced second superconducting dome in $A_x\text{Fe}_{2-x}\text{Se}_2$ [$A = \text{K}, (\text{Tl}, \text{Rb})$]. *New J Phys*, 2013, 15: 093045

Pressure effects on the FeSe-based superconductors

CHENG JinGuang* & SUN JianPing

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

Among the iron-based superconductors, FeSe and its derived materials have attracted much research interest recently due to its unusual normal- and superconducting-state properties. High-pressure techniques play an important role in unveiling the competing electronic orders and tuning the high- T_c superconductivity of FeSe. In this article, we review the recent progresses on the pressure effects of FeSe-based superconducting materials by using the cubic anvil cell apparatus that can maintain an excellent hydrostatic pressure condition up to 15 GPa. For the bulk FeSe, we construct a comprehensive temperature-pressure phase diagram, which uncovers a dome-shaped antiferromagnetic phase boundary and reveals the detailed competing relationships between the nematicity, antiferromagnetism, and superconductivity. Our high-pressure Hall results further indicate that the critical antiferromagnetic fluctuations play an important role for achieving the high- T_c superconductivity in FeSe under high pressure. For the intercalated FeSe-based high- T_c superconductors, we find that the application of high pressure first suppresses the superconducting phase SC-I and then induces a second high- T_c superconducting phase SC-II above a critical pressure P_c with the optimal T_c over 50 K, resulting a double-dome shaped phase diagram. In addition, the reemergence of SC-II phase under pressure is found to accompany with a concurrent enhancement of electron carrier density. Without structural transition below 10 GPa, the observed SC-II with enhanced carrier density should be ascribed to an electronic origin presumably associated with pressure-induced Fermi surface reconstruction.

FeSe, high- T_c superconductivity, high pressure measurements, magnetic quantum critical point, SC-II phase

PACS: 74.70.Pq, 71.27.+a, 72.15.-v

doi: [10.1360/SSPMA-2020-0414](https://doi.org/10.1360/SSPMA-2020-0414)