



准一维Cr基超导体 RbCr_3As_3 的高压研究

刘子儀, 穆青隔, 任治安*, 孙建平*, 程金光

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, 任治安, E-mail: renzhian@iphy.ac.cn; 孙建平, E-mail: jpsun@iphy.ac.cn

收稿日期: 2023-10-19; 接受日期: 2023-11-14; 网络出版日期: 2023-12-01

国家重点研发计划(编号: 2022YFA1403900, 2021YFA1400200)、国家自然科学基金(编号: 12025408, 12174424, 11921004)、中国科学院青年创新促进会项目(编号: 2023007)和中国博士后科学基金(编号: 2022M723354, 2023T160676)资助

摘要 近年来, 新型铬(Cr)基非常规超导体因呈现独特晶体结构和奇异物理性质而备受关注, 成为超导领域的研究热点之一. $A_2\text{Cr}_3\text{As}_3$ ($A = \text{K}, \text{Rb}, \text{Cs}$) 是首个常压下的Cr基超导体, 通过化学方法脱除其中一个A离子, 可以获得具有类似准一维结构的 $A\text{Cr}_3\text{As}_3$ 超导体. 其中, KCr_3As_3 和 RbCr_3As_3 的超导转变温度(T_c)可以分别达到~5 和~7.3 K, 其上临界场($\mu_0 H_{c2}(0)$)远超泡利极限($\mu_0 H_P^{\text{BCS}}$). 在前期针对 $A_2\text{Cr}_3\text{As}_3$ 的高压研究基础上, 本文分别采用六面砧和金刚石对顶砧装置详细研究了 RbCr_3As_3 的电输运和晶体结构在高压下的演化规律. 研究结果表明, 随着压力增加, T_c 单调降低, 7 GPa时下降到~2 K; $\mu_0 H_{c2}(0)$ 也随加压而逐渐减小, 但在研究的压力范围内(0–7 GPa)仍高于 $\mu_0 H_P^{\text{BCS}}$ 和轨道极限($\mu_0 H_{c2}^{\text{orb}}(0)$), 这与 $\text{K}_2\text{Cr}_3\text{As}_3$ 在高压下 $\mu_0 H_{c2}(0)$ 迅速减小至低于 $\mu_0 H_P^{\text{BCS}}$ 的趋势明显不同. 高压XRD结果显示在0–8.5 GPa范围内 RbCr_3As_3 没有发生结构相变, a 轴和 c 轴分别缩短~8.3%和~2.4%, 表现出较强各向异性的压缩行为. 通过对比 $A_2\text{Cr}_3\text{As}_3$ 与 $A\text{Cr}_3\text{As}_3$ 体系的高压调控规律, 我们讨论了化学压力和物理压力对这两类Cr基超导体物性的不同影响.

关键词 RbCr_3As_3 , 非常规超导, Cr基超导体, 高压调控

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

1 引言

新型非常规超导体的探索和机理研究一直是超导领域的核心研究内容^[1–3]. 重费米子、铜氧化物和铁基等非常规超导体体系的典型特征是, 超导电性往往出现在反铁磁序被抑制的临界点附近, 这成为探索新型非常规超导体体系和揭示超导机理的指导思路之一. 基于该思路, 中国科学院物理研究所的研究团队与合作者

采用高压抑制了CrAs的长程反铁磁序, 率先在其磁性量子临界点附近发现超导电性, 打破了Cr基化合物不容易出现超导电性的普遍认识, 开辟了探索和研究Cr基超导体的新方向^[4].

2015年, 浙江大学曹光早研究组^[5]发现首个常压下Cr基超导体 $\text{K}_2\text{Cr}_3\text{As}_3$ ($T_c = 6.1$ K), 其具有准一维晶体结构, 其中 $(\text{Cr}_3\text{As}_3)^{2-}$ 形成双壁纳米管链, 与碱金属离子 K^+ 有序间隔排布. 随后, 他们采用Rb和Cs替换K

引用格式: 刘子儀, 穆青隔, 任治安, 等. 准一维Cr基超导体 RbCr_3As_3 的高压研究. 中国科学: 物理学 力学 天文学, 2023, 53: 127417
Liu Z Y, Mu Q G, Ren Z A, et al. Effect of hydrostatic pressure on the superconducting properties of quasi-one-dimensional superconductor RbCr_3As_3 (in Chinese). Sci Sin-Phys Mech Astron, 2023, 53: 127417, doi: 10.1360/SSPMA-2023-0380

相继合成了具有相同结构的 $\text{Rb}_2\text{Cr}_3\text{As}_3$ 和 $\text{Cs}_2\text{Cr}_3\text{As}_3$ 超导体^[6,7], 其 T_c 分别是4.8和2.2 K. 对于这一类新型的准一维Cr基超导体 $A_2\text{Cr}_3\text{As}_3$ ($A = \text{K}, \text{Rb}, \text{Cs}$), 实验发现其正常态和超导态均表现出新奇的物性. 例如, 在正常态, 电阻率在很宽温区呈现线性温度依赖关系, 而较大的电子比热系数暗示其存在较强的电子关联^[5,8]; 核磁共振实验显示自旋涨落在 T_c 之上表现出明显的增强^[9-11], 而自旋-晶格弛豫率具有理论预测的一维Tomonaga-Luttinger液体特征幂律行为^[10,12]. 在超导态, 核磁共振谱在 T_c 附近没有出现Hebel-Slichter相干峰^[9-11]; 同时电子比热系数呈现出随磁场 $H^{1/2}$ 的依赖关系, 说明其超导能隙具有线性节点^[6,13,14]. 此外, 其上临界场(μ_0H_{c2})远远超过泡利极限($\mu_0H_p^{\text{BCS}}$), 暗示其可能存在自旋三重态的超导配对^[5-8,15,16]. 最近的核磁共振结果也提供了 $\text{K}_2\text{Cr}_3\text{As}_3$ 具有自旋三重态超导配对的实验证据^[17]. 基于第一性原理的能带结构计算结果显示, $\text{K}_2\text{Cr}_3\text{As}_3$ 在费米能级附近的电子结构由两个准一维的能带和一个三维能带组成, 且它们都来源于Cr的3d轨道^[12,18-24]. 基于此电子能带结构的理论研究, 发现此体系可能存在铁磁涨落驱动的自旋三重态配对^[25,26]. 近期, 结合第一性原理计算和中子散射实验表明, $\text{K}_2\text{Cr}_3\text{As}_3$ 中的奇异物性可能受到了结构畸变、电-声耦合和磁性相互作用的联合影响, 这比之前的研究结果所涉及的相互作用要复杂很多^[27]. 虽然 $A_2\text{Cr}_3\text{As}_3$ 体系的新奇物性引起了广泛的关注, 但是由于其在空气中非常不稳定, 因此对其超导机理的研究受到了一定限制. 随后, 曹光早研究组^[28-30]从 $A_2\text{Cr}_3\text{As}_3$ 体系出发又通过软化学反应获得了 $A\text{Cr}_3\text{As}_3$ ($A = \text{K}, \text{Rb}, \text{Cs}$)材料体系的多晶样品, 它们仍然保持准一维(Cr_3As_3)线状长链结构, 其物理性质测量表明样品在高温区具有局域磁矩行为, 而在低温形成了团簇自旋玻璃态, 但并未观察到任何超导电性.

近年来, 中国科学院物理研究所任治安研究组通过对233型的 $A_2\text{Cr}_3\text{As}_3$ ($A = \text{K}, \text{Rb}, \text{Cs}$)单晶脱碱金属的方式制备了133型的 $A\text{Cr}_3\text{As}_3$ 超导体^[31,32]. 尽管这两个体系具有类似的准一维晶体结构, 但却表现出截然不同的物理和化学性质. 一方面, $A_2\text{Cr}_3\text{As}_3$ 在大气环境下极其容易变质, 而 $A\text{Cr}_3\text{As}_3$ 在空气中则非常稳定, 这有利于对其开展深入的物性和微观机理研究. 另一方面, $A_2\text{Cr}_3\text{As}_3$ 体系的 T_c 随 A 位离子半径减小而升高, 表现出正的化学压力效应, 而 $A\text{Cr}_3\text{As}_3$ 体系的 T_c 则随 A 位

离子半径减小而降低, 表现出负的化学压力效应. 此外, $A\text{Cr}_3\text{As}_3$ 具有中心对称的晶体结构, 这也不同于 $A_2\text{Cr}_3\text{As}_3$ 的非中心对称晶体结构. 近期, 浙江大学曹光早研究组针对 KCr_3As_3 单晶和多晶样品进行了深入的研究, 发现无论是单晶还是多晶, 都可以得到超导或者非超导相的样品, 结合实验与理论计算提出其超导电性与 Cr_3As_3 链中嵌入 H^+ 离子密切相关^[33,34].

除了化学元素替换, 施加物理压力也是调控量子材料晶体结构和电子能带的有效手段. 特别是, 通过研究超导体性质的压力效应, 不仅可以为进一步提高 T_c 提供指导, 而且还可以为理解超导微观机理提供关键信息. 一般来说, 对超导材料施加静水压会造成两方面的影响: 一方面, 压力缩短原子间距, 增加轨道重叠而展宽能带, 从而降低费米能附近的态密度和减弱电子关联效应; 另一方面, 压力还会增强化学键而使晶格硬化, 将声子谱推向更高的能量. 因此, 研究超导材料的压力效应可以揭示体系中电子关联和电-声耦合的演化与影响.

在前期工作中, 已有对 $\text{K}_2\text{Cr}_3\text{As}_3$ 和 $\text{Rb}_2\text{Cr}_3\text{As}_3$ 超导体开展的高压调控研究^[35,36], 结果表明其 T_c 均随压力增加而逐渐降低, 而且其 μ_0H_{c2} 随加压迅速降至 $\mu_0H_p^{\text{BCS}}$ 以下, 说明高压可能抑制了铁磁涨落而驱动此体系逐渐远离自旋三重态配对^[36]. 以上高压结果也显示, 物理压力与化学压力对 $A_2\text{Cr}_3\text{As}_3$ 体系的 T_c 具有相反的调控作用. 如前所述, $A\text{Cr}_3\text{As}_3$ 体系具有负的化学压力的效应, 因此很有必要在较大范围的静水压下研究该体系的超导性质随压力的演化行为, 通过与 $A_2\text{Cr}_3\text{As}_3$ 进行对比, 有助于进一步理解这类准一维Cr基超导体的反常性质.

在本工作中, 我们利用可以产生良好静水压环境的活塞-圆筒和六面砧高压物性测量系统^[37], 详细研究了 KCr_3As_3 单晶在1 GPa以内的磁化率和 RbCr_3As_3 单晶在8 GPa以内的电输运性质与晶体结构, 建立了它们的高压相图. 结果表明, 随压力增加, 其 T_c 和 μ_0H_{c2} 逐渐降低, 在测试的压力范围内并没有发生结构相变, 这与 $A_2\text{Cr}_3\text{As}_3$ 体系的结果一致. 然而, 与 $A_2\text{Cr}_3\text{As}_3$ 不同的是, RbCr_3As_3 单晶的 μ_0H_{c2} 在7 GPa的压力范围内仍大于 $\mu_0H_p^{\text{BCS}}$, 这说明高压并没有很快抑制该体系的铁磁涨落和驱动该体系远离自旋三重态配对基态. 以上结果对进一步认识和理解准一维Cr基超导体体系的性质提供

了有用的实验数据.

2 实验方法

本实验中所使用的 KCr_3As_3 和 RbCr_3As_3 单晶是通过将相应的 $\text{K}_2\text{Cr}_3\text{As}_3$ 和 $\text{Rb}_2\text{Cr}_3\text{As}_3$ 单晶前驱物置于无水乙醇中脱碱金属离子获得的, 详细过程可以参考文献[31,32]. 高压下的交流磁化率是通过互感法测量的: 手工绕制的初级激励线圈和次级探测线圈相互嵌套, 将 KCr_3As_3 单晶和高纯度Pb固定在互感线圈中, 然后将线圈放置在充满液体传压介质的特氟龙胶囊内, 并安装于活塞-圆筒压腔中. 测量交流磁化率时, 初级激励线圈中施加的交流电流为1 mA和317 Hz, 利用Stanford Research SR830锁相放大器采集次级探测线圈中的感应信号. 实验中采用Daphne 7373作为液体传压介质, 通过Pb的超导 T_c 变化来确定样品的实际压强, 即 $P = (7.2 - T_c)/0.365$ (P 和 T_c 的单位分别为GPa和K). 高压电阻测试则是利用六面砧压腔完成; 其三轴加压方式和采用甘油作为液体传压介质可使样品处于较好的静水压环境, 即压力具有各向同性和均匀性. 电阻采用标准的四电极法测试, 即将四根平行的金线电极固定在 RbCr_3As_3 单晶表面, 在测试的过程中, 样品与磁场呈现 45° 左右的夹角. 利用Keithley 2400电流源和2182纳伏表测量直流电阻. 关于六面砧压腔中的样品安装和压力校准细节可参考文献[37,38]. 高压下的XRD是在北京同步辐射设施(BSRF)的4W2光束线站完成的, 其波长为 $\lambda = 0.6199 \text{ \AA}$. 首先, 将 RbCr_3As_3 单晶研磨成粉末并预压成厚度约为 $10 \mu\text{m}$ 的薄片, 放入对称型金刚石对顶砧压腔中; 然后再将红宝石球装入样品室进行压力校准, 传压介质使用硅油以确保准静水压条件. 室温压力通过红宝石荧光法测定.

3 实验结果与讨论

对于常压下 T_c 较低的 KCr_3As_3 单晶, 我们通过高压下的交流磁化率 $\chi'(T)$ 测试, 详细跟踪了其 T_c 随压力的演化. 如图1(a)所示, 随着压力的升高其 T_c 呈现单调降低的趋势, 在0.90 GPa时已降至3 K附近. 此处的 T_c 是由正常态与进入超导态的两条直线的交点来定义的.

对于常压下 T_c 较高的 RbCr_3As_3 单晶, 我们利用六面砧压腔测试了其在7 GPa以内不同压力下的变温电

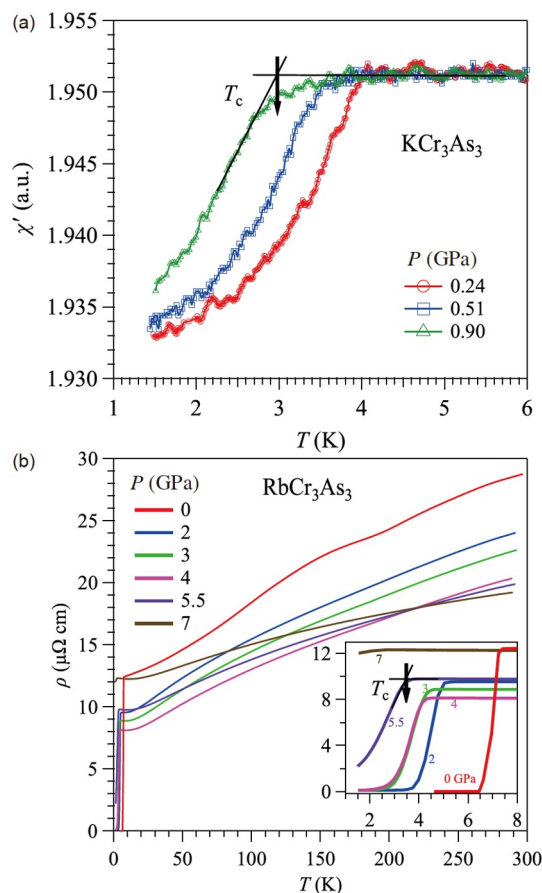


图1 (网络版彩图) (a) 利用活塞-圆筒压腔测试的 KCr_3As_3 单晶在不同高压下的交流磁化率; (b) 利用六面砧测试的 RbCr_3As_3 单晶在不同压力下的电阻率曲线(右下插图显示了低温区电阻率数据)

Figure 1 (Color online) (a) AC susceptibility of KCr_3As_3 single crystal measured in a piston cylinder cell under various pressures; (b) temperature dependence of resistivity for RbCr_3As_3 single crystal at various pressures measured with cubic anvil cell. The inset shows the resistivity curves at low temperatures.

阻率 $\rho(T)$ 曲线, 如图1(b)所示. 考虑到在5.5 GPa时直到仪器达到的最低温度1.5 K也没有观测到零电阻, 为了保证整个压力区间演化的一致性, 我们采用正常态电阻线性延长线与超导区电阻线性延长线的交点温度来定义超导 T_c . 从图中可以清晰地看到, 从常压逐渐加压至2 GPa时, $\rho(T)$ 曲线几乎平行下移, 右下插图清晰地显示出其超导转变也被显著抑制, 从常压下的7.3 K降低到2 GPa时的5 K. 当压力从2 GPa升至3 GPa时, $\rho(T)$ 继续向下平移, 其 T_c 也继续向低温移动. 当继续升高压力至4 GPa时, 尽管正常态 $\rho(T)$ 呈现继续平行下移的趋势, 但 T_c 相比3 GPa仅表现出微弱降低. 当进一步升压

至 5.5 GPa, 正常态 $\rho(T)$ 曲线在低温出现了反常的升高现象, T_c 进一步被压制到更低的温度, 在 1.5 K 的最低温下也没有达到零电阻. 随着压力继续升高至 7 GPa, 其 $\rho(T)$ 曲线在低温区呈现出更加显著的上升, 且超导转变在电阻上仅出现微弱的降低. 以上结果表明, ACr_3As_3 体系在压力下呈现出与 $A_2Cr_3As_3$ 类似的演化趋势, 即高压会逐步抑制其超导转变^[35,36].

为了研究 ACr_3As_3 超导体的 $\mu_0 H_{c2}$ 随压力的演化行为, 我们进一步测量了 $RbCr_3As_3$ 单晶样品在不同压力 and 不同磁场下的低温电阻率曲线, 如图 2(a)–(d) 所示. 从图中可以看到, 随着磁场的逐渐升高, 样品的超导转变逐渐平行地向低温移动. 图 2(e) 显示了不同温度下的临界磁场 $H_{c2}(T)$ 数据. 我们利用 Ginzburg-Landau (GL) 公式 $\mu_0 H_{c2}(T) = \mu_0 H_{c2}(0)(1 - t^2)/(1 + t^2)$ 对其进行拟合, 其中 $t = T/T_c$, 同时还将 GL 拟合的结果与 $\mu_0 H_p^{BCS}(0)$, $\mu_0 H_{c2}^{orb}(0)$ 进行了对比, 其中 $\mu_0 H_p^{BCS}(0) = 1.84T_c$, 而在 Werthamer-Helfand-Hohenberg 模型中不引入自旋-轨道耦合的干净极限下的 $\mu_0 H_{c2}^{orb}(0) = -0.73T_c(dH_{c2}/dT)_{T_c}$. 在常压下, $RbCr_3As_3$ 的 $\mu_0 H_{c2}^{GL}(0)$ 约为 72.4 T, 其不仅远远大于 $\mu_0 H_p^{BCS}(0) \sim 13.4$ T, 也大于 $\mu_0 H_{c2}^{orb}(0) \sim 57.3$ T, 这说明该体系很可能具有自旋三重态的超导配对机制. 与 $T_c(P)$ 的变化趋势一致, $\mu_0 H_p^{BCS}(0)$ 随着压力的升高而逐渐降低, 如图 2(f) 所示. 相比于 $\mu_0 H_p^{BCS}(0)$, $\mu_0 H_{c2}^{orb}(0)$ 与 $\mu_0 H_{c2}^{GL}(0)$ 随着压力的增加也逐渐减小, 但下降速度更快. 本研究最重要的发现是, $RbCr_3As_3$ 单晶的 $\mu_0 H_{c2}$ 在测试的压力范围内仍大于 $\mu_0 H_p^{BCS}$, 并一直保持 $\mu_0 H_{c2}^{GL}(0) > \mu_0 H_{c2}^{orb}(0) > \mu_0 H_p^{BCS}(0)$; 但是它们的差距在逐渐变小, 说明 7 GPa 的高压几乎没有改变体系的超导配对机制. 另外, 我们也讨论了不同定义超导的 T_c 方式对其上临界场的影响, 例如采用正常态电阻 R_n 的 50% 定义超导 T_c . 如图 2 所示, 我们可以清晰地看出电阻曲线经历超导转变的温区在磁场下基本呈现平行移动的趋势, 以 50% R_n 定义超导 T_c 和以上讨论的结果随压力的演化基本一致, 并不会影响以上的结论.

为了进一步理解 ACr_3As_3 超导体的晶体结构与物性演化的关系, 我们对 $RbCr_3As_3$ 进行了高压同步辐射衍射研究. 如图 3(a) 所示, 所有衍射峰均可以使用空间群 $P6_3/m$ (No. 176) 很好地指标化, 并且在衍射峰中未检

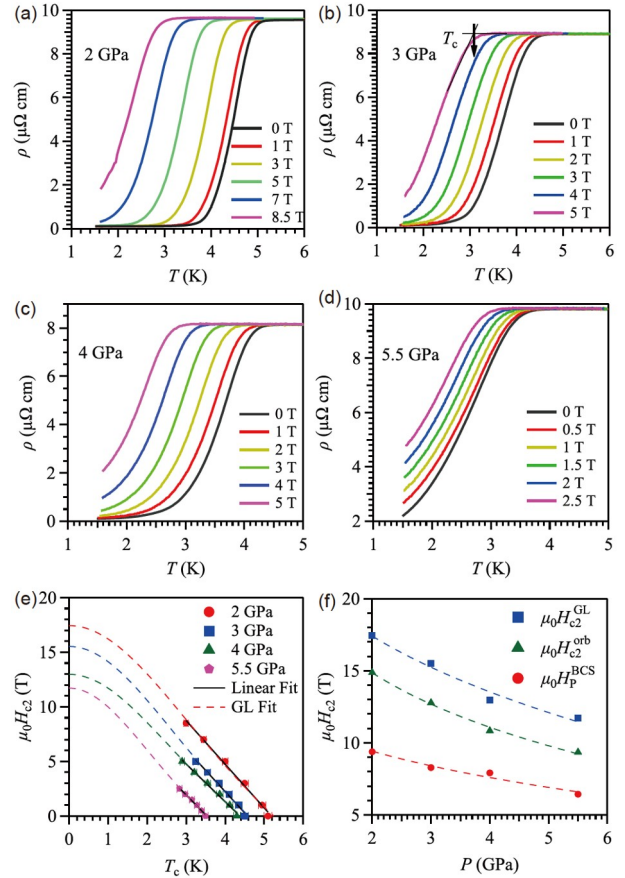


图 2 (网络版彩图) (a)–(d) $RbCr_3As_3$ 单晶在不同压力和不同磁场下的低温电阻率曲线; (e) 不同压力下的上临界场对温度的依赖关系; (f) 上临界场随压力的演化行为

Figure 2 (Color online) (a)–(d) Low-temperature resistivity curves of $RbCr_3As_3$ single crystal under various pressures and magnetic fields; (e) the temperature dependence of the upper critical field under various pressures; (f) the evolution of the upper critical field under pressure.

测到其他杂质相. 随着压力的逐渐升高, 没有新峰的产生, 说明在测试的压力范围内没有发生压力诱导的结构相变, 这与 $A_2Cr_3As_3$ 的结果也是一致的^[35]. 我们采用 LeBil 方法精修了高压 XRD 数据并从中提取了晶格参数, 如图 3(b) 和 (c) 所示. 从图 3(b) 中可以看出, $RbCr_3As_3$ 的晶格参数随压力的增加而连续平缓地减小, 在 0–5.5 GPa 的范围内其 a 轴和 c 轴分别减小了 $\sim 8.3\%$ 和 $\sim 2.4\%$, 表现出各向异性的压缩行为, 这与其准一维的晶体结构也是一致的. 图 3(c) 显示了 $RbCr_3As_3$ 的体积 $V(P)$ 随压力的变化关系, 使用 Birch-Murnaghan (BM) 方程拟合可以得到体弹模量 $B_0 = 21.73$ GPa 和 $V_0 = 319.78 \text{ \AA}^3$.

基于以上实验结果, 本工作获得了 RbCr_3As_3 样品的超导性质和晶格参数随压力的变化关系. 结合之前针对 $\text{A}_2\text{Cr}_3\text{As}_3$ 体系的高压研究^[35,36], 下面我们对该类准一维Cr基超导体的压力效应进行对比讨论.

在 ACr_3As_3 体系中, 化学压力造成的变化与物理压力类似, 即随着碱金属离子半径的减小, 体系的 T_c 从 RbCr_3As_3 的 ~ 7.3 K逐渐降低到 KCr_3As_3 的 ~ 5 K^[31,32]. 根据已报道的晶体结构数据可知, RbCr_3As_3 在常压下的体积为 319.777 \AA^3 , 而 KCr_3As_3 的体积为 299.256 \AA^3 , 基于图3所示的 RbCr_3As_3 高压下的晶格常数变化可知, 当对其升高压力至约2 GPa时, 其体积逐渐减小至 299.256 \AA^3 附近. 如果仅从晶格常数的变化分析, 说明 KCr_3As_3 在常压下的物性非常接近 RbCr_3As_3 在2 GPa附近的物性. 如图1(b)所示, 对 RbCr_3As_3 施加高压到2 GPa时, 其 T_c 由常压的7.3 K降至 ~ 5 K, 这与 KCr_3As_3 常压下的 T_c 非常一致. 另外, KCr_3As_3 在常压下的 $\mu_0 H_{c2}^{\text{GL}}(0)$ 约为20.8 T, 也大于 $\mu_0 H_{\text{P}}^{\text{BCS}}(0) \sim 8.6$ T. 此外, RbCr_3As_3 在2 GPa时的 $\mu_0 H_{c2}^{\text{GL}}(0)$ 约为14.01 T和 $\mu_0 H_{\text{P}}^{\text{BCS}}(0) \sim 8.3$ T(此处

T_c 取电阻下降一半的温度值), 略小于 KCr_3As_3 文献报道的GL拟合数据^[32]. 如图3所示, 虽然 RbCr_3As_3 在2 GPa时的 a 轴与 KCr_3As_3 几乎相等, 但是其 c 轴明显小于 KCr_3As_3 , 这说明准一维链长度的减小在一定程度上使得上临界场降低. 以上结果与分析说明在133型Cr基超导体中化学压力与物理压力具有相一致的作用.

如图4(a)–(c)所示, 这两个体系的 T_c 随压力的升高均呈现逐渐减小的趋势, 但随晶格参数或 A 位碱金属离子半径增加却表现出截然相反的变化规律. 对于 $\text{A}_2\text{Cr}_3\text{As}_3$ 体系, 在常压下随着碱金属离子半径的减小(化学压力增加), T_c 逐渐升高, 表现出正的化学压力效应, 但与物理压力的效果相反. 另外, 在该体系中, 常压下上临界场 $\mu_0 H_{c2}^{\text{GL}}(0) > \mu_0 H_{c2}^{\text{orb}}(0) > \mu_0 H_{\text{P}}^{\text{BCS}}(0)$ 的关系始终成立; 然而, 对 $\text{K}_2\text{Cr}_3\text{As}_3$ 的高压调控研究发现很小的物理压力就可以使上临界场关系出现反转, 即在1.5 GPa以上时 $\mu_0 H_{\text{P}}^{\text{BCS}}(0) > \mu_0 H_{c2}^{\text{orb}}(0) > \mu_0 H_{c2}^{\text{GL}}(0)$. 然而, 对于 ACr_3As_3 体系, 在常压下随碱金属离子半径的

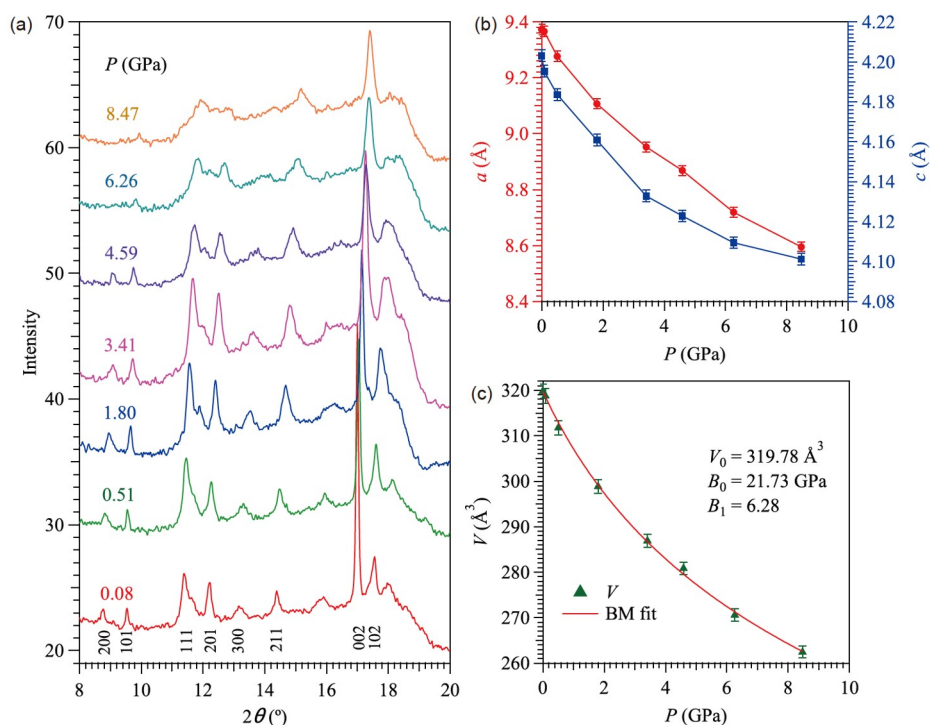


图3 (网络版彩图) (a) 8.5 GPa以内室温下 RbCr_3As_3 晶体的XRD衍射图谱; (b), (c) 晶格常数 a 、 c 和 V 的压力依赖关系. (c) 红色实线为BM方程拟合的结果

Figure 3 (Color online) (a) Room-temperature XRD patterns of RbCr_3As_3 under various pressures up to ~ 8.5 GPa, (b), (c) pressure dependences of lattice parameters a , c and volume V . The red solid line in (c) represents the fit to the BM equation.

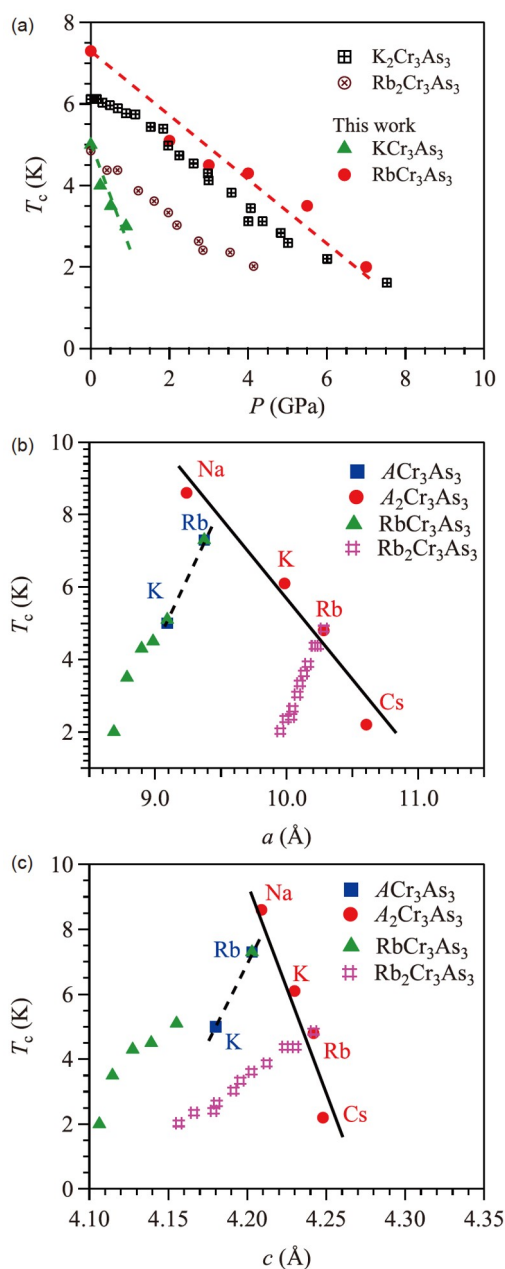


图 4 (网络版彩图) ACr_3As_3 与 $A_2Cr_3As_3$ 的 T_c 随压力(a)、晶格常数 a 与 c (b), (c))的演化关系

Figure 4 (Color online) Variations of T_c as a function of pressure (a), and the lattice parameters a and c (b), (c) for the series of ACr_3As_3 and $A_2Cr_3As_3$.

减小, T_c 逐渐降低, 表现出负的化学压力效应, 与物理压力的效果一致. 而 $RbCr_3As_3$ 的高压结果显示, 常压下的上临界场 $\mu_0 H_{c2}^{GL}(0) > \mu_0 H_{c2}^{orb}(0) > \mu_0 H_P^{BCS}(0)$ 关系在

7 GPa高压下仍保持成立, 这与 $A_2Cr_3As_3$ 体系形成了鲜明的对比.

对于这两类具有准一维链状结构的Cr基超导体, $[Cr_3As_3]_{\infty}$ 链对其超导性质具有决定性影响. 根据之前的研究结果, 在 $A_2Cr_3As_3$ 体系中替换不同的碱金属 A 离子主要是改变准一维 $[Cr_3As_3]_{\infty}$ 链之间的距离, 而对 $[Cr_3As_3]_{\infty}$ 链的影响非常小^[5-7]. 随着 A 离子半径的减小, $[Cr_3As_3]_{\infty}$ 链间耦合逐渐增强, T_c 升高; 然而, 当施加物理压力时, 高压不仅减小链间距离, 而且还可以有效压缩 $[Cr_3As_3]_{\infty}$ 链内的原子间距, 造成系统的电子关联和磁性不稳定性逐渐减弱, 使其 T_c 和 $\mu_0 H_{c2}$ 显著降低, 最终低于泡利极限, 暗示其配对机制可能发生了自旋三重态到自旋单态的过渡^[36].

通过对比 ACr_3As_3 与 $A_2Cr_3As_3$ 体系的 T_c 随晶格常数 a 和 c 的演化关系, 如图4(b)和(c)所示, 准一维Cr基超导体的最佳 T_c 可能发生在 $[Cr_3As_3]_{\infty}$ 链间距离和链内间距的最佳值时, 即 $a \sim 9.2 \text{ \AA}$ 和 $c \sim 4.21 \text{ \AA}$. 然而, 133和233体系恰好位于晶格常数 a 和 c 最佳值的两侧, 也进一步说明了这两个体系为什么存在相反的演化趋势. 随着压力的逐渐升高, 两个体系的晶格常数 a 和 c 均在逐渐减小, 其 T_c 呈现出非线性降低的趋势, 说明准一维 $[Cr_3As_3]_{\infty}$ 链间距离和链内间距在决定超导方面均扮演着重要的作用. 如图4(b)所示, $Rb_2Cr_3As_3$ 在加压至 $\sim 5 \text{ GPa}$ 时, 其 a 逐渐减小至 $\sim 9.9 \text{ \AA}$, 此时仍然大于133体系在常压下的 a 轴晶格常数; 如图4(c)所示, 在此压力下 $Rb_2Cr_3As_3$ 的 $c \sim 4.16 \text{ \AA}$, 与 $RbCr_3As_3$ 在2 GPa附近的晶格常数 c 相近, 而233体系的上临界场此时已降至泡利极限之下, $RbCr_3As_3$ 的上临界场却始终保持着 $\mu_0 H_{c2}^{GL}(0) > \mu_0 H_{c2}^{orb}(0) > \mu_0 H_P^{BCS}(0)$ 的关系, 这说明133体系上临界场在高压下的演化与 $[Cr_3As_3]_{\infty}$ 链间距进一步减小相关, 其极大地增强了链间的耦合, 使得体系的铁磁涨落能够保持, 进而保持着自旋三重态超导配对.

4 结论

本工作研究了 $RbCr_3As_3$ 超导体的压力效应, 发现其 T_c 从常压下的 $\sim 7.3 \text{ K}$ 逐渐被压制到7 GPa时的 $\sim 2 \text{ K}$; 与此同时, 其上临界场却始终保持着 $\mu_0 H_{c2}^{GL}(0) > \mu_0 H_{c2}^{orb}(0) > \mu_0 H_P^{BCS}(0)$ 的关系, 暗示着该体系可能具有较稳定的

自旋三重态超导配对. 通过对比 ACr_3As_3 和 $A_2Cr_3As_3$ 体系的物理和化学压力效应, 进一步说明了 $[Cr_3As_3]_{\infty}$ 链对其超导物性的决定作用, 这对后续深入理解和调控Cr基超导体物性提供了一定指导.

致谢 感谢中国科学院物理研究所王铂森副研究员、杨芃焘副主任工程师和陈科宇博士在研究Cr基超导体体系时提供的合作与协助.

参考文献

- 1 Liu Z C, Li B Z, Xiao Y S, et al. Superconductivity in $ThMo_2Si_2C$ with Mo_2C square net. *Sci China-Phys Mech Astron*, 2021, 64: 277411
- 2 Wang H H, Cheng Z H, Shi M Z, et al. Electrical transport properties of FeSe single crystal under high magnetic field. *Sci China-Phys Mech Astron*, 2021, 64: 287411
- 3 Yu J, Liu T, Ruan B B, et al. Co-doping effects on magnetism and superconductivity in the 112-type $EuFeAs_2$ system. *Sci China-Phys Mech Astron*, 2021, 64: 267411
- 4 Wu W, Cheng J, Matsubayashi K, et al. Superconductivity in the vicinity of antiferromagnetic order in CrAs. *Nat Commun*, 2014, 5: 5508
- 5 Bao J K, Liu J Y, Ma C W, et al. Superconductivity in quasi-one-dimensional $K_2Cr_3As_3$ with significant electron correlations. *Phys Rev X*, 2015, 5: 011013
- 6 Tang Z T, Bao J K, Liu Y, et al. Unconventional superconductivity in quasi-one-dimensional $Rb_2Cr_3As_3$. *Phys Rev B*, 2015, 91: 020506
- 7 Tang Z T, Bao J K, Wang Z, et al. Superconductivity in quasi-one-dimensional $Cs_2Cr_3As_3$ with large interchain distance. *Sci China Mater*, 2015, 58: 16–20
- 8 Kong T, Bud'ko S L, Canfield P C. Anisotropic H_{c2} , thermodynamic and transport measurements, and pressure dependence of T_c in $K_2Cr_3As_3$ single crystals. *Phys Rev B*, 2015, 91: 020507
- 9 Yang J, Tang Z T, Cao G H, et al. Ferromagnetic spin fluctuation and unconventional superconductivity in $Rb_2Cr_3As_3$ revealed by ^{75}As NMR and NQR. *Phys Rev Lett*, 2015, 115: 147002
- 10 Zhi H Z, Imai T, Ning F L, et al. NMR investigation of the quasi-one-dimensional superconductor $K_2Cr_3As_3$. *Phys Rev Lett*, 2015, 114: 147004
- 11 Zhi H, Lee D, Imai T, et al. ^{133}Cs and ^{75}As NMR investigation of the normal metallic state of quasi-one-dimensional $Cs_2Cr_3As_3$. *Phys Rev B*, 2016, 93: 174508
- 12 Watson M D, Feng Y, Nicholson C W, et al. Multiband one-dimensional electronic structure and spectroscopic signature of Tomonaga-Luttinger liquid behavior in $K_2Cr_3As_3$. *Phys Rev Lett*, 2017, 118: 097002
- 13 Adroja D T, Bhattacharyya A, Telling M, et al. Superconducting ground state of quasi-one-dimensional $K_2Cr_3As_3$ investigated using μSR measurements. *Phys Rev B*, 2015, 92: 134505
- 14 Adroja D, Bhattacharyya A, Smidman M, et al. Nodal superconducting gap structure in the quasi-one-dimensional $Cs_2Cr_3As_3$ investigated using μSR measurements. *J Phys Soc Jpn*, 2017, 86: 044710
- 15 Tang Z T, Liu Y, Bao J K, et al. Anisotropic upper critical magnetic fields in $Rb_2Cr_3As_3$ superconductor. *J Phys-Condens Matter*, 2017, 29: 424002
- 16 Zuo H, Bao J K, Liu Y, et al. Temperature and angular dependence of the upper critical field in $K_2Cr_3As_3$. *Phys Rev B*, 2017, 95: 014502
- 17 Yang J, Luo J, Yi C, et al. Spin-triplet superconductivity in $K_2Cr_3As_3$. *Sci Adv*, 2021, 7: eabl4432
- 18 Hu J P. Novel quasi-one-dimensional chromium-based unconventional superconductors. *Sci Bull*, 2015, 60: 2140–2141
- 19 Subedi A. Strong-coupling electron-phonon superconductivity in noncentrosymmetric quasi-one-dimensional $K_2Cr_3As_3$. *Phys Rev B*, 2015, 92: 174501
- 20 Zhong H T, Feng X Y, Chen H, et al. Formation of molecular-orbital bands in a twisted Hubbard tube: Implications for unconventional superconductivity in $K_2Cr_3As_3$. *Phys Rev Lett*, 2015, 115: 227001
- 21 Miao J J, Zhang F C, Zhou Y. Instability of three-band Tomonaga-Luttinger liquid: Renormalization group analysis and possible application to $K_2Cr_3As_3$. *Phys Rev B*, 2016, 94: 205129
- 22 Wachtel G, Kim Y B. Nodal-line pairing with 1D-3D coupled Fermi surfaces: A model motivated by Cr-based superconductors. *Phys Rev B*,

- 2016, 94: 104522
- 23 Edlmann M, Sangiovanni G, Capone M, et al. Chromium analogs of iron-based superconductors. *Phys Rev B*, 2017, 95: 205118
- 24 Zhou Y, Cao C, Zhang F C. Theory for superconductivity in alkali chromium arsenides $A_2Cr_3As_3$ ($A = K, Rb, Cs$). *Sci Bull*, 2017, 62: 208–211
- 25 Wu X X, Le C C, Yuan J, et al. Magnetism in quasi-one-dimensional $A_2Cr_3As_3$ ($A = K, Rb$) superconductors. *Chin Phys Lett*, 2015, 32: 057401
- 26 Wu X, Yang F, Le C, et al. Triplet p_z -wave pairing in quasi-one-dimensional $A_2Cr_3As_3$ superconductors ($A = K, Rb, Cs$). *Phys Rev B*, 2015, 92: 104511
- 27 Taddei K M, Xing G, Sun J, et al. Frustrated structural instability in superconducting quasi-one-dimensional $K_2Cr_3As_3$. *Phys Rev Lett*, 2018, 121: 187002
- 28 Bao J K, Li L, Tang Z T, et al. Cluster spin-glass ground state in quasi-one-dimensional KCr_3As_3 . *Phys Rev B*, 2015, 91: 180404
- 29 Tang Z T, Bao J K, Liu Y, et al. Synthesis, crystal structure and physical properties of quasi-one-dimensional ACr_3As_3 ($A = Rb, Cs$). *Sci China Mater*, 2015, 58: 543–549
- 30 Liu Y, Bao J K, Zuo H K, et al. Effect of impurity scattering on superconductivity in $K_2Cr_3As_3$. *Sci China-Phys Mech Astron*, 2016, 59: 657402
- 31 Liu T, Mu Q G, Pan B J, et al. Superconductivity at 7.3 K in the 133-type Cr-based $RbCr_3As_3$ single crystals. *EPL*, 2017, 120: 27006
- 32 Mu Q G, Ruan B B, Pan B J, et al. Superconductivity at 5 K in quasi-one-dimensional Cr-based KCr_3As_3 single crystals. *Phys Rev B*, 2017, 96: 140504
- 33 Xiang J J, Yu Y L, Wu S Q, et al. Superconductivity induced by aging and annealing in $K_{1-\beta}Cr_3As_3H_x$. *Phys Rev Mater*, 2019, 3: 114802
- 34 Li B Z, Wu S Q, Xiang J J, et al. Antiferromagnetic insulating state in quasi-one-dimensional $K_2Cr_3As_3H$. *Sci China-Phys Mech Astron*, 2023, 66: 237411
- 35 Wang Z, Yi W, Wu Q, et al. Correlation between superconductivity and bond angle of CrAs chain in non-centrosymmetric compounds $A_2Cr_3As_3$ ($A = K, Rb$). *Sci Rep*, 2016, 6: 37878
- 36 Sun J P, Jiao Y Y, Yang C L, et al. Effect of hydrostatic pressure on the superconducting properties of quasi-1D superconductor $K_2Cr_3As_3$. *J Phys-Condens Matter*, 2017, 29: 455603
- 37 Cheng J G, Wang B S, Sun J P, et al. Cubic anvil cell apparatus for high-pressure and low-temperature physical property measurements. *Chin Phys B*, 2018, 27: 077403
- 38 Cheng J G, Matsubayashi K, Nagasaki S, et al. Integrated-fin gasket for palm cubic-anvil high pressure apparatus. *Rev Sci Instruments*, 2014, 85: 093907

Effect of hydrostatic pressure on the superconducting properties of quasi-one-dimensional superconductor RbCr_3As_3

LIU ZiYi, MU QingGe, REN ZhiAn^{*}, SUN JianPing^{*} & CHENG JinGuang

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

Cr-based unconventional superconductors discovered in recent years have gained intensive attention due to their unique crystal structure and fascinating physical properties, which have become one of the hot topics in the field of superconductivity research. $A_2\text{Cr}_3\text{As}_3$ ($A = \text{K}, \text{Rb}, \text{Cs}$) is the first Cr-based superconducting system at ambient pressure, and the related $A\text{Cr}_3\text{As}_3$ superconductors with similar quasi-one-dimensional structure can be obtained by chemically removing one of the A ions in $A_2\text{Cr}_3\text{As}_3$. At ambient pressure, the superconducting transition temperature (T_c) of RbCr_3As_3 can reach ~ 7.3 K, and its upper critical field ($\mu_0 H_{c2}(0)$) also far exceeds the Pauli limit ($\mu_0 H_P^{\text{BCS}}$). As a continuation of previous high-pressure studies on $A_2\text{Cr}_3\text{As}_3$, herein, we further investigate the detailed transport properties and the crystal structure of RbCr_3As_3 under high pressures using the cubic anvil cell and diamond anvil cell, respectively. The findings reveal that its T_c gradually decreases from ~ 7.3 K at ambient pressure to ~ 2 K at 7 GPa. Meanwhile, $\mu_0 H_{c2}(0)$ also gradually decreases with increasing pressure but is still higher than $\mu_0 H_P^{\text{BCS}}$ and the orbital-limiting $\mu_0 H_{c2}^{\text{orb}}(0)$ in the studied pressure range (0–7 GPa). This is in sharp contrast to $\text{K}_2\text{Cr}_3\text{As}_3$, which exhibits a rapid decrease of $\mu_0 H_{c2}(0)$ to below $\mu_0 H_P^{\text{BCS}}$ under high pressures. The high-pressure X-ray diffraction results reveal no structural phase transition up to 8.5 GPa, but the anisotropic compression with the a and c axes decreased by $\sim 8.3\%$ and $\sim 2.4\%$, respectively. By comparison of the high-pressure results of $A_2\text{Cr}_3\text{As}_3$ and $A\text{Cr}_3\text{As}_3$ systems, we also discuss the different effects of chemical pressure and physical pressure on the physical properties of these two types of Cr-based superconductors.

RbCr_3As_3 , unconventional superconductivity, Cr-based superconductors, high-pressure regulation

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

doi: [10.1360/SSPMA-2023-0380](https://doi.org/10.1360/SSPMA-2023-0380)