

# 高压下准二维手性磁性材料 $\text{Cr}_{1/3}\text{TaS}_2$ 的电输运性质研究\*

王相奇<sup>1)†</sup> 张敏<sup>2)</sup>

1) (中国矿业大学材料与物理学院, 徐州 221116)

2) (安徽大学物质科学与信息技术研究院, 合肥 230031)

## 摘 要

手性螺旋磁性材料  $\text{Cr}_{1/3}\text{TaS}_2$  具有强烈的自旋-晶格耦合效应与独特的拓扑磁态, 是探索自旋电子学与量子输运现象的理想平台。本文利用金刚石对顶砧技术, 系统研究了  $\text{Cr}_{1/3}\text{TaS}_2$  单晶在 0.6–34.0 GPa 的宽压力范围内的电输运及磁阻演化规律。研究发现, 在 0.6 GPa 至 5.0 GPa 的低压区间, 该材料保持良好的金属性, 且长程磁有序转变温度随压力的增加从 ~150 K 显著抑制至 ~75 K。当压力升高至 7.0–20.0 GPa 的中压区间时, 材料表现出反常的类半导体输运行为, 但电阻率绝对值依然维持在中等导体量级, 表明可能的局域化效应或费米面赝能隙的打开主导了此压力区间下材料的散射机制。在 23.0 GPa 以上的高压区, 晶格压缩引起的能带展宽使材料重新恢复为金属行为。此外, 磁阻测试揭示, 低压下材料由于自旋无序散射被抑制而呈现负磁阻, 且在磁有序转变温度附近达到峰值; 随着压力增加至 13.0 GPa, 磁阻发生由负转正的符号反转, 从输运层面上暗示了体系内长程磁有序态可能发生了解体, 且局域磁矩受到了强烈的压制。本工作系统揭示了  $\text{Cr}_{1/3}\text{TaS}_2$  在极端压力条件下的电输运及磁序演化规律,为理解层状磁性材料中晶格、电荷与自旋自由度的相互作用提供了关键的实验依据。

**关键词:**  $\text{Cr}_{1/3}\text{TaS}_2$ , 高压电输运, 手性磁性, 磁相变, 磁阻效应

**基金:** 国家自然科学基金 (批准号: 12504208) 资助的课题

† 通信作者. E-mail: xiangqiwang@cumt.edu.cn

第一作者. E-mail: xiangqiwang@cumt.edu.cn

# 1 引言

层状过渡金属硫族化合物因其高度可调的低维电子结构和丰富多样的物理相变,在凝聚态物理与新型量子器件研究中占据着重要地位<sup>[1-4]</sup>。特别是在 2H 构型的层状过渡金属硫族化合物(如 NbS<sub>2</sub>, TaS<sub>2</sub>)的范德华层间插入 3d 过渡金属原子(如 Cr, Mn, Fe),可以形成一系列插层型化合物<sup>[5,6]</sup>。这种原子的周期性插层不仅有效改变了母体材料的费米面拓扑结构,引入了强烈的电子关联效应,更关键的是打破了原有的空间反演对称性,使得晶体结构转变为非中心对称空间群。这种特殊的晶体对称性破缺为诱导复杂的新型磁基态和自旋-轨道耦合现象提供了结构基础<sup>[7-10]</sup>。

作为该家族中的典型代表, Cr<sub>1/3</sub>TaS<sub>2</sub> 是一种备受瞩目的准二维手性磁性材料<sup>[11-18]</sup>。插层的 Cr 原子不仅为体系提供了局域的磁矩,而且由于空间反演对称性的缺失,晶格中产生了显著的 Dzyaloshinskii-Moriya 反对称交换相互作用。在 Cr<sub>1/3</sub>TaS<sub>2</sub> 中, Dzyaloshinskii-Moriya 相互作用与传统的铁磁交换相互作用产生竞争,使得该体系在零磁场下极易形成具有固定螺旋周期的手性螺旋磁态或手性磁孤子晶格。常压下的物性表征表明, Cr<sub>1/3</sub>TaS<sub>2</sub> 在临界温度 150 K 左右发生顺磁态向长程磁有序态的相变,并在临界温度附近展现出强烈的自旋涨落与异常的输运响应。

静水压是一种极其有效且“纯净”的热力学调控手段,可以深入探究自旋、电荷与晶格之间的耦合机制<sup>[19-21]</sup>。与化学掺杂不同,压力调控能够在不引入晶格缺陷、杂质散射或无序性的前提下,连续且精确地改变晶格常数。在准二维层状材料中,高压能够显著压缩范德华层间距,增强相邻层间电子轨道的重叠与杂化,进而大幅度调制费米面结构以及介导磁矩的 Ruderman-Kittel-Kasuya-Yosida (RKKY) 交换相互作用。因此,高压环境能够打破 Cr<sub>1/3</sub>TaS<sub>2</sub> 原本微妙的磁相互作用平衡,迫使体系发生磁性与电子态的量子相变。

目前,关于 Cr<sub>1/3</sub>TaS<sub>2</sub> 在常压或低压下的磁电性质已有诸多报道,但在极端高压条件下,其磁有序态的演化轨迹以及宽压区内的电输运行为演化规律仍缺乏系统性的研究。基于此,本文利用金刚石对顶砧技术,对 Cr<sub>1/3</sub>TaS<sub>2</sub> 单晶进行了高达 34.0 GPa 的原位高压电阻率及磁阻测量。通过对不同压力区间下输运特性的细致分析,揭示了该体系从金属性到类半导体态,再重新进入金属态的演化过程,并探讨了高压对体系长程磁有序的压制及其磁阻效应的演化规律。

## 2 实验

本实验采用了化学气相输运法生长  $\text{Cr}_{1/3}\text{TaS}_2$  的单晶样品。首先，将高纯度的 Cr、Ta 和 S 粉末(纯度为 99.99%)混合研磨，并密封于高真空石英管中，在 1023 K 下烧结 60 小时。随后，将所得粉末与输运剂  $\text{I}_2$  共同密封于另一真空石英管内，将其置于双温区管式炉中进行晶体生长。在此期间，热端与冷端温度分别恒定在 1333 K 和 1223 K，保温 250 小时后，以约 25 K/h 的速率缓慢降温至室温。

我们在常压下对样品的物相和成分进行了常规表征。采用 X 射线衍射仪 (XRD, Rigaku TTR III) 对单晶样品的晶体结构进行了测试。利用配备有能量色散 X 射线光谱仪的扫描电子显微镜 (SEM-EDS, Hitachi S-4800) 对样品的元素组成和实际化学计量比进行了表征。

高压电输运实验采用无磁性铍铜合金制成的螺旋加压型金刚石对顶砧进行，所用金刚石砧面直径为 300  $\mu\text{m}$ 。实验中，将不锈钢垫片预压至 40  $\mu\text{m}$  厚度，并在其中心钻出直径为 100  $\mu\text{m}$  的微孔作为样品腔。为防止电学短路，对样品腔进行了绝缘封孔处理。随后，将单晶样品解理至约 10  $\mu\text{m}$  厚，切割为适配微孔的尺寸后置于样品腔内，并封入 Daphne 7373 作为传压介质。实验过程中的压力通过标准红宝物的荧光峰位移进行原位标定。电学输运测试在综合物性测量系统 (PPMS-DynaCool, Quantum Design Inc.) 中完成。实验采用标准四探针法精确测量样品的面内电阻率，测试的温度范围设定为 2 K 至 300 K，外加磁场范围为 -9 T 至 9 T。

## 3 结果与讨论

为了确认所生长单晶的物相纯度与实际插层浓度，我们首先在常压下对样品进行了 XRD 和 EDS 表征。如图 1(a) 所示的单晶样品 XRD 衍射图谱中，仅观察到一系列尖锐且强烈的 (00l) 族衍射峰，未见其他杂相的衍射峰，这表明生长的单晶具有极高的结晶质量以及 c 轴取向。根据布拉格衍射定律及各峰的位置，计算得出该样品的 c 轴晶格常数为 12.297 Å，这一结果与文献中报道的晶格常数一致<sup>[11]</sup>。此外，图 1(b) 展示了样品的 EDS 能谱图，清晰探测到了 Cr、Ta 和 S 元素的特征峰。通过对多处区域的能谱进行定量定标分析，得出样品中实际的化学组分为  $\text{Cr}_{0.33(4)}\text{TaS}_{1.92(5)}$ 。该实际元素比例与  $\text{Cr}_{1/3}\text{TaS}_2$  的名义化学计量比相符合，证明了样品具有准确的 Cr 原子插层浓度。

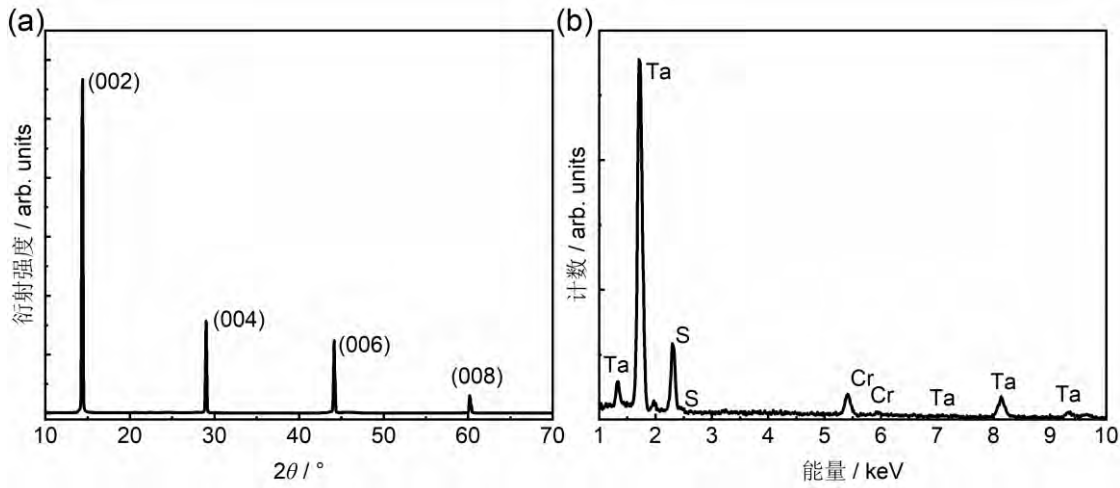


图 1: (a) 常压下  $\text{Cr}_{1/3}\text{TaS}_2$  单晶的 XRD 图谱。(b)  $\text{Cr}_{1/3}\text{TaS}_2$  单晶样品的 EDS 图谱。

Fig. 1. (a) XRD pattern of the  $\text{Cr}_{1/3}\text{TaS}_2$  single crystal at ambient pressure. (b) EDS profile of the  $\text{Cr}_{1/3}\text{TaS}_2$  single crystal sample.

图 2 展示了  $\text{Cr}_{1/3}\text{TaS}_2$  单晶在 0.6 GPa 到 5.0 GPa 压力范围内的面内电阻率随温度变化的曲线。在此低压区间内，材料整体表现出典型的金属行为，即电阻率随着温度的降低而单调减小。在 0.6 GPa 下，电阻率-温度曲线的斜率在约 150 K 附近出现明显的异常转折。这一特征对应着  $\text{Cr}_{1/3}\text{TaS}_2$  体系从高温顺磁态向低温手性磁有序态的相变温度  $T_C$ <sup>[11]</sup>。在  $T_C$  之上，随温度升高的电阻率主要受声子散射支配；当体系冷却跨越  $T_C$  进入磁有序态后，局域磁矩发生长程排列，导致传导电子的自旋无序散射被强烈抑制，使得电阻率在相变点之下表现出更快速的下降。随着压力的进一步增加，磁有序转变温度  $T_C$  呈现出向低温方向连续移动的显著趋势。加压至 5.0 GPa 时，该相变温度已大幅压制至约 75 K 左右。这种压力导致的磁有序温度下降，可以从层间耦合的微观机制来解释<sup>[19,22]</sup>。静水压显著缩短了  $\text{Cr}_{1/3}\text{TaS}_2$  的范德华层间距，导致沿 c 轴方向的轨道重叠和电子杂化增强。这种改变直接调制了介导局域 Cr 磁矩的 RKKY 相互作用，打破了铁磁与反铁磁交换的原始能量平衡。轨道宽化和电子动能的增加增强了体系的自旋量子涨落，从而有效推迟了长程磁有序的建立，表现为宏观  $T_C$  的持续降低。



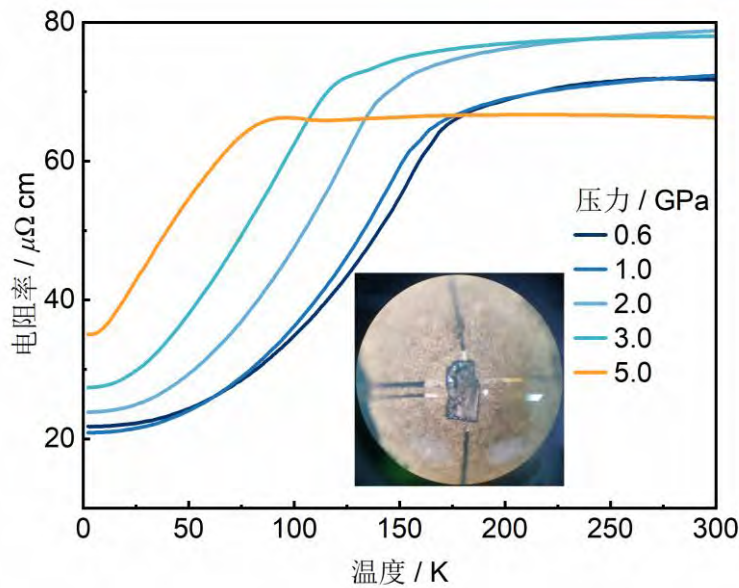


图 2: 0.6 GPa 到 5.0 GPa 压力下  $\text{Cr}_{1/3}\text{TaS}_2$  的电阻率-温度曲线。插图为金刚石对顶砧样品腔内，单晶样品与标准电极连接状态的光学显微照片。

Fig. 2. Temperature dependence of resistivity for  $\text{Cr}_{1/3}\text{TaS}_2$  at pressures from 0.6 to 5.0 GPa. The inset displays an optical micrograph showing the configuration of the single crystal sample connected to standard electrodes inside the sample chamber of the diamond anvil cell.

当外加压力升高至 7.0 – 20.0 GPa 区间时，样品的电输运行为发生了显著的转变，如图 3 所示。在此中压区间内，材料的电阻率随温度的降低出现明显的上升趋势，呈现出“类半导体”的输运特征。

值得重点探讨的是，尽管该温区内的电阻率-温度曲线斜率发生反转，但其电阻率绝对值依然维持在相对较小的数量级（即属于中等导体特征），并没有表现出如莫特绝缘体或带隙半导体那样在极低温下的指数型发散。这种现象暗示体系在此压区内并未发生彻底的金属-绝缘体相变。这种反常上翘行为的物理起源可能有两个方面<sup>[23,24]</sup>：其一，由于高压引起的晶格扭曲可能导致费米面发生重构，在部分费米面上打开了赭能隙，导致参与导电的态密度减少；其二，由于压力导致某些层间原子位置的微观滑移或短程无序性增加，结合体系固有的电子关联效应，使得传导电子受到强烈的局域化束缚，表现出类似于安德森局域化的弱局域化电阻上翘行为。

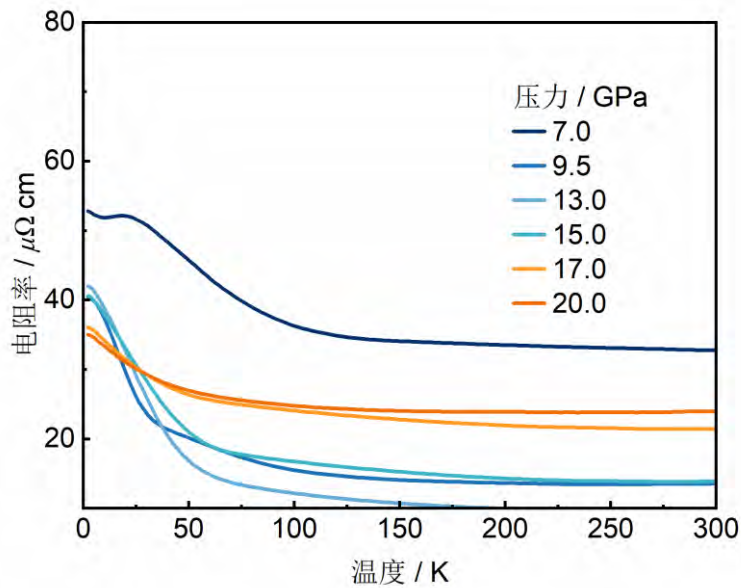


图 3: 7.0 GPa 到 20.0 GPa 压力下  $\text{Cr}_{1/3}\text{TaS}_2$  的电阻率-温度曲线。

Fig. 3. Temperature dependence of resistivity for  $\text{Cr}_{1/3}\text{TaS}_2$  at pressures from 7.0 to 20.0 GPa.

图 4(a) 给出了 23.0 GPa 到 34.0 GPa 范围内的电阻率-温度曲线。实验结果表明，当压力超过 23.0 GPa 临界值后，低温区间的电阻上翘现象逐渐被抹平并最终消失，材料的输运行为重新恢复为标准的全温区金属性。这种高压诱导的金属态重入现象揭示了体系在极高压下的电子态重构。在 23.0 GPa 以上，极端的体积压缩使得过渡金属原子的 d 轨道重叠急剧增加，能带宽度  $W$  显著展宽。根据莫特判据，当体系的电子动能（正比于带宽  $W$ ）彻底超越库仑排斥能  $U$  以及任何由结构畸变带来的局域化势能时，原本导致类半导体行为的局域态或能隙将被完全破坏。此时，费米面处重新拥有充裕的巡游电子，体系跨越量子临界点，进入了高度巡游的常规费米液体金属态。在完成 34.0 GPa 的高压测量后，我们将压力释放到 0.3 GPa 并进行了原位电输运复测（如图 4(b) 所示）。结果表明，卸压后样品的低温金属性行为得到了恢复，且其长程磁有序转变温度也重新回到了 ~150 K 附近。

近期的原位高压拉曼光谱研究结果表明<sup>[25]</sup>，由于插层原子与母体层间微妙的相互作用， $\text{Cr}_{1/3}\text{TaS}_2$  在约 2.5 GPa 的较低压力下便会发生微观晶格畸变，使得晶体空间群由非中心对称的  $P6_322$  转变为对称性更低的  $P321$  空间群。尽管在低压区间内（0.6–5.0 GPa）这种微弱的畸变尚未破坏费米面整体的巡游导电通道，但其引起的对称性破缺连续调制了介导局域磁矩的 RKKY 交换相互作用，造成了  $T_C$  的连续降低。随着外加压力进一步推进至中压区（7.0–20.0 GPa），累积

的晶格畸变与层间滑移通过自旋-晶格耦合效应,极有可能在部分费米面上诱导打开了赝能隙,或增强了电子关联导致的弱局域化束缚,从而驱动了反常的类半导体行为的涌现。值得注意的是,拉曼光谱进一步揭示了  $\text{Cr}_{1/3}\text{TaS}_2$  中的 Cr 插层在压缩过程中具有独特的刚性,未发生类似于 Fe 插层体系中剧烈的一阶结构塌陷或严重无序化。这种晶格刚性特征对应了我们的输运实验发现:一方面,中压区的电阻率绝对值始终维持在中等导体量级而非绝缘发散;另一方面,随着压力继续升高至 23.0 GPa 以上,高度压缩的晶格促使能带剧烈展宽,巡游电子动能得以轻松克服微弱畸变带来的局域化势能,从而重新进入常规金属态。

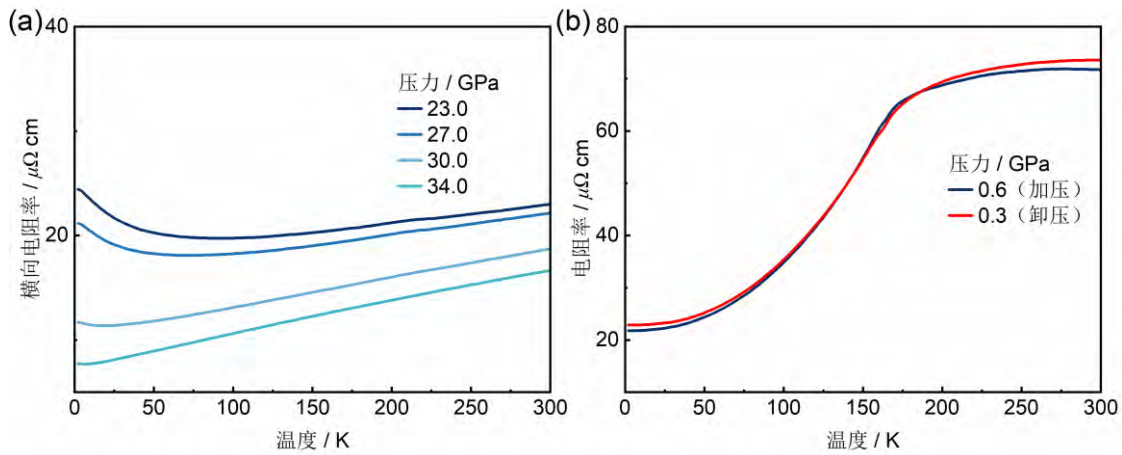


图 4 (a) 23.0 GPa 到 34.0 GPa 压力下  $\text{Cr}_{1/3}\text{TaS}_2$  的电阻率-温度曲线。(b) 压力从 34.0 GPa 释放至 0.3 GPa 后的电阻率-温度曲线,展示了输运性质演化的良好可逆性。

Fig. 4. (a) Temperature dependence of resistivity for  $\text{Cr}_{1/3}\text{TaS}_2$  at pressures from 23.0 to 34.0 GPa. (b) Resistivity-temperature curve obtained after decompression from 34.0 GPa back to 0.3 GPa, demonstrating the excellent reversibility of the transport property evolution.

为了进一步阐明磁自由度在输运过程中的具体作用,我们系统测量了样品在不同压力和温度下对外加磁场 (-9 T 到 9 T) 的磁阻响应。如图 5(a-c) 所示,在 0.6 GPa 的低压下,材料在各个温度下均表现出明显的负磁阻行为。这是因为外加磁场能够有效地克服热涨落,强制对齐 Cr 原子的局域磁矩,从而大幅减少了传导电子在输运过程中遭受的自旋无序散射。图 5(d) 展示了 0.6 GPa 压力下,在 9 T 外场下的磁阻随温度的变化分布,可以清晰地看到,负磁阻的绝对值在相变温度  $T_c$  附近达到最大。一般来说,在磁相变临界点附近,体系的自旋热涨落最为剧烈,磁矩处于高度无序的临界状态;此时施加外磁场对自旋涨落的抑制效果



最为显著，释放出的负磁阻信号也最强，这与众多金属磁性材料（如稀土金属及其他插层硫族化合物）的规律一致<sup>[26-28]</sup>。

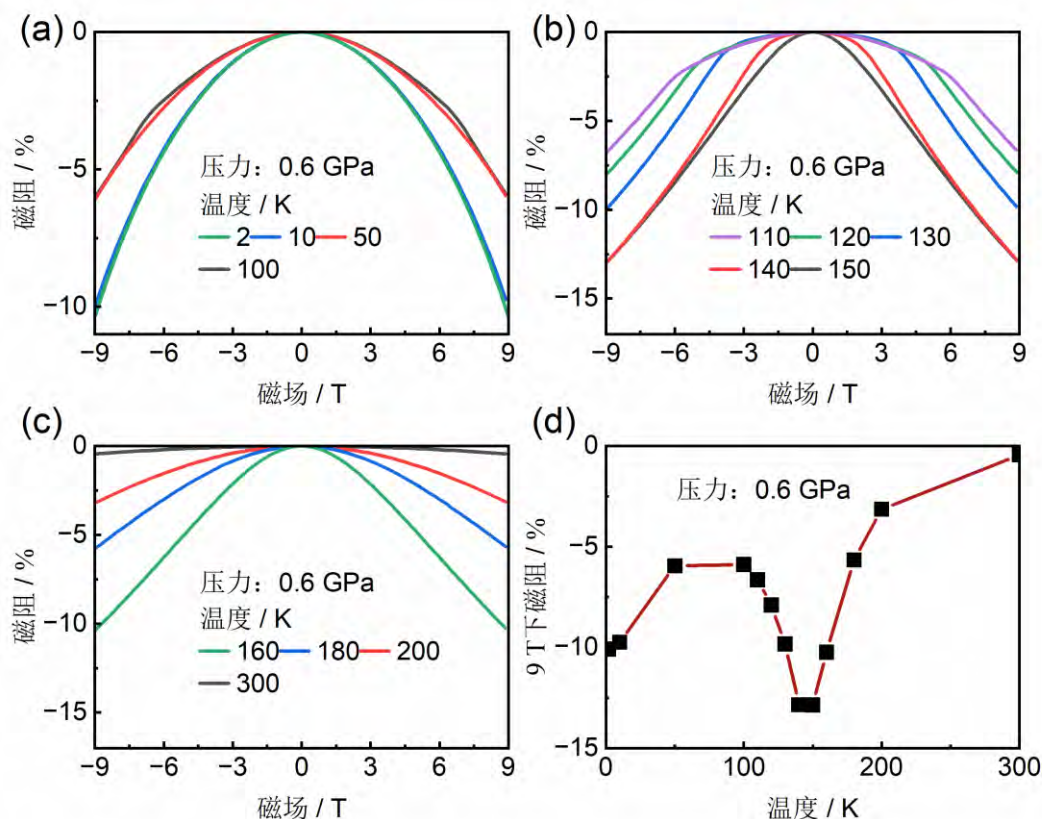


图 5: (a)-(c) 0.6 GPa 下不同温度的磁阻曲线。(d) 9 T 磁场下磁阻随温度的变化。

Fig. 5. (a)-(c) Magnetoresistance curves at various temperatures under 0.6 GPa. (d) Temperature dependence of magnetoresistance at a magnetic field of 9 T.

我们进一步测试了磁阻随压力的演化规律。图 6(a-c) 记录了 2 K 极低温下不同压力的等温磁阻曲线，图 6(d) 则直观提取了 9 T 磁场下磁阻值随压力的变化轨迹。在加压初期（5.0 GPa 以内），负磁阻的绝对值呈现增大趋势，并在 5.0 GPa 时达到最大（ $\sim -16\%$ ）。这说明初期的压力增强了晶格内的磁不稳定性，使得体系对外部磁场的响应更为敏感，自旋散射对电阻的贡献比例上升。然而，随着压力突破 5.0 GPa，负磁阻效应开始急剧减弱。最为关键的转变发生在 13.0 GPa：在此压力点，材料的磁阻发生了一次明显的符号反转，由负磁阻完全转变为正磁阻，并在更高的压力下持续表现为正磁阻。负磁阻起源于局域磁矩的场致有序化；因此，13.0 GPa 处的磁阻反转强烈暗示高压下 d 电子的高度巡游化可能导致了“自旋塌缩”效应，体系中的长程磁有序态发生了解体，局域磁矩受到强



烈的压制。此时，自旋无序散射不再是电阻的主要来源，取而代之的是由常规费米面构型和外场下电子运动受洛伦兹力偏转所主导的轨道正磁阻机制。

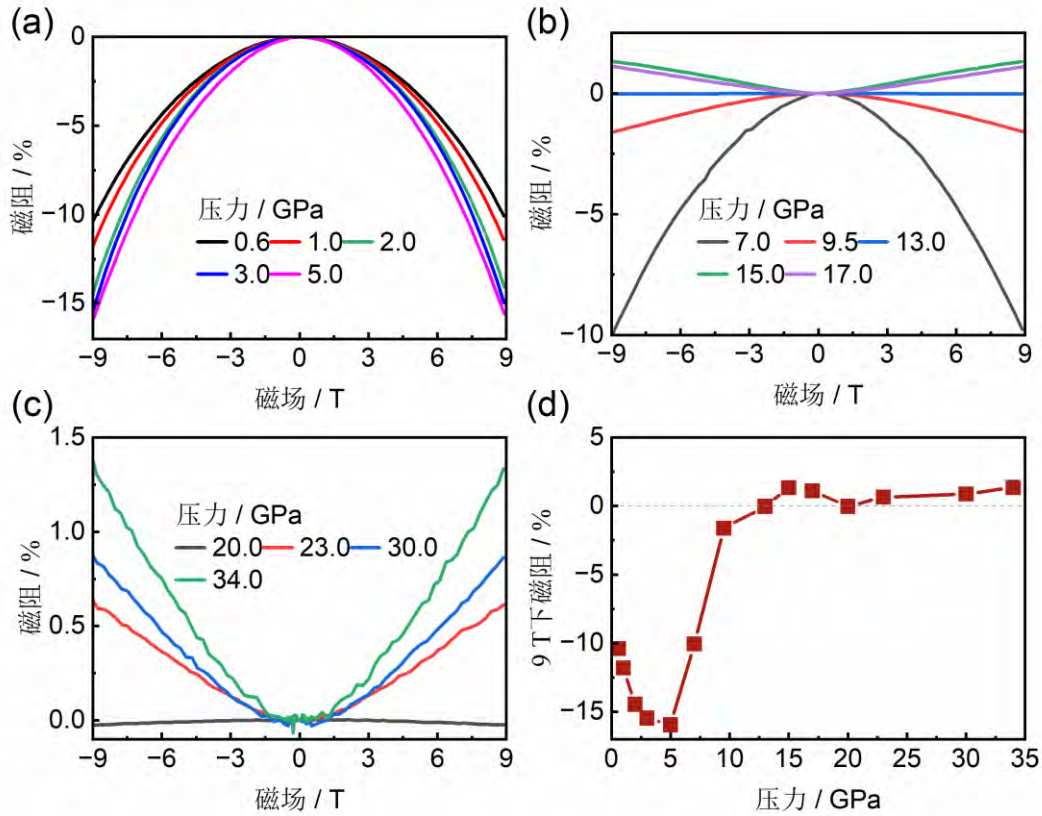


图 6: (a)-(c) 2 K 下不同压力的磁阻曲线。(d) 9 T 磁场下磁阻随压力的变化。

Fig. 6. (a)-(c) Magnetoresistance curves at various pressures at 2 K. (d) Pressure dependence of magnetoresistance at a magnetic field of 9 T.

## 4 结 论

本文利用高压输运测试技术，系统研究了准二维手性磁性材料  $\text{Cr}_{1/3}\text{TaS}_2$  在 34.0 GPa 压力范围内的电学性质。实验取得以下结论：低压区（0.6–5.0 GPa）：体系维持良好的金属态，高压促使层间耦合显著增强，改变了 RKKY 交换作用的平衡，导致长程磁有序转变温度  $T_C$  从 150 K 被大幅抑制至约 75 K。中压区（7.0–20.0 GPa）：压力诱导出“类半导体”的输运行为，这可能归因于压力导致的费米面赝能隙打开或短程无序带来的电子弱局域化效应。高压区（23.0–34.0 GPa）：随着能带的大幅展宽，体系的电子动能彻底克服了关联和局域化势能，材料发生金属态的重入现象。磁阻测试表明，外场下的自旋无序散射使得低压下呈现负磁阻并在  $T_C$  处最大；2 K 下的磁阻在 13.0 GPa 时发生由负到正的符号反转，从实验上间接表明极端高压导致了体系长程磁有序的解体和局域磁矩的强

烈压制。本研究不仅系统梳理了  $\text{Cr}_{1/3}\text{TaS}_2$  从低压到极端高压下的输运机制演化路径, 更为理解插层型范德华材料中晶格压缩对复杂磁相互作用及电子能带拓扑的调制规律提供了重要的实验支撑。

## 参考文献

- [1] Manzeli S, Ovchinnikov D, Pasquier D, Yazyev O V, Kis A 2017 *Nat. Rev. Mater.* **2** 17033
- [2] Chhowalla M, Shin H S, Eda G, Li L J, Loh K P, Zhang H 2013 *Nat. Chem.* **5** 263
- [3] Geim A K, Grigorieva I V 2013 *Nature* **499** 419
- [4] Lu X Y, Li Z Q 2019 *Acta Phys. Sin.* **68** 220303 (in Chinese) [吕新宇, 李志强 2019 物理学报 **68** 220303]
- [5] Xie L S, Husremović S, Gonzalez O, Craig I M, Bediako D K 2022 *J. Am. Chem. Soc.* **144** 9525
- [6] Husremović S, Gonzalez O, Goodge B H, Xie L S, Kong Z, Zhang W, Ryu S H, Ribet S M, Fender S S, Bustillo K C, Song C, Ciston J, Taniguchi T, Watanabe K, Ophus C, Jozwiak C, Bostwick A, Rotenberg E, Bediako D K 2025 *Nat. Commun.* **16** 1208
- [7] Little A, Lee C, John C, Doyle S, Maniv E, Nair N L, Chen W, Rees D, Venderbos J W F, Fernandes R M, Analytis J G, Orenstein J 2020 *Nat. Mater.* **19** 1062
- [8] Wu S, Xu Z J, Haley S C, Weber S F, Acharya A, Maniv E, Qiu Y, Aczel A A, Settineri N S, Neaton J B, Analytis J G, Birgeneau R J 2022 *Phys. Rev. X* **12** 021003
- [9] Yu X Y, Feng H L, Gu G X, Liu Y H, Li Z L, Xu T S, Li Y Q 2019 *Acta Phys. Sin.* **68** 247201 (in Chinese) [于晓洋, 冯红磊, 辜刚旭, 刘永河, 李治林, 徐同帅, 李永庆 2019 物理学报 **68** 247201]
- [10] Jiang X H, Qin S C, Xing Z Y, Zou X Y, Deng Y F, Wang W, Wang L 2021 *Acta Phys. Sin.* **70** 127801 (in Chinese) [蒋小红, 秦泗晨, 幸子越, 邹星宇, 邓一帆, 王伟, 王琳 2021 物理学报 **70** 127801]
- [11] Obeysekera D, Gamage K, Gao Y, Cheong S W, Yang J 2021 *Adv. Electron. Mater.* **7** 2100424

- [12] Xie L S, Gonzalez O, Li K, Michiardi M, Gorovikov S, Ryu S H, Fender S S, Zonno M, Jo N H, Zhdanovich S, Jozwiak C, Bostwick A, Husremović S, Erođić M P, Mollazadeh C, Damascelli A, Rotenberg E, Ping Y, Bediako D K 2023 *Chem. Mater.* **35** 7239
- [13] Musfeldt J L, Gu Y, Haraldsen J T, Du K, Yapa P, Yang J, Mandrus D G, Cheong S W, Liu Z 2025 *npj Quantum Mater.* **10** 27
- [14] Yamasaki Y, Moriya R, Arai M, Masubuchi S, Pyon S, Tamegai T, Ueno K, Machida T 2017 *2D Mater.* **4** 041007
- [15] Du K, Huang F T, Kim J, Lim S J, Gamage K, Yang J, Mostovoy M, Garlow J, Han M G, Zhu Y, Cheong S W 2021 *Proc. Natl. Acad. Sci. USA* **118** e2023337118
- [16] Du Z, Liu W, Wang A, Rahman A, Han Y, Tong W, Fan J, Ma C, Ge M, Pi L, Zhang Y, Qu Z, Zhang L 2024 *Appl. Phys. Lett.* **125** 132404
- [17] Zhang C H, Algaidi H, Li P, Yuan Y, Zhang X X 2022 *Rare Metals* **41** 3005
- [18] Han M G, Garlow J, Du K, Cheong S W, Zhu Y 2023 *Appl. Phys. Lett.* **123** 022405
- [19] Wang X Q, Li Z Y, Zhang M, Hou T, Zhao J G, Li L, Rahman A, Xu Z L, Gong J B, Chi Z H, Dai R C, Wang Z P, Qiao Z H, Zhang Z M 2019 *Phys. Rev. B* **100** 014407
- [20] Wang X Q, Jia Y, Song X P, Tan J 2024 *Phys. Rev. B* **110** 144403
- [21] Wang X Q, Wang C, Wang Y P, Ye C H, Rahman A, Zhang M, Son S, Tan J, Zhang Z M, Ji W, Park J G, Zhang K X 2025 *ACS Nano* **19** 8108
- [22] Zhang L, Tang Y, Khan A R, Hasan M M, Wang P, Yan H, Yildirim T, Torres J F, Neupane G P, Zhang Y P, Li Q, Lu Y R 2020 *Adv. Sci.* **7** 2002697
- [23] Li S, Zhang Y C, Wu H L, Zhai H F, Liu W H, Petit D P, Oh J S, Denlinger J, McCandless G T, Chan J Y, Birgeneau R J, Li G, Yi M, Lv B 2021 *npj Quantum Mater.* **6** 80
- [24] Li Q X, Wang B, Tang N N, Li C S, Yi E K, Shen B, Guo D H, Zhong D Y, Wang H C 2023 *Chin. Phys. Lett.* **40** 067101
- [25] Musfeldt J L, Gu Y, Haraldsen J T, Du K, Yapa P, Yang J, Mandrus D G, Cheong S W, Liu Z 2025 *npj Quantum Mater.* **10** 27

- [26]Zhang J R, Wang P C, Yin H, Qian Y C, Wang W, Li F X, Wang L 2022 *J. Alloys Compd.* **892** 162122
- [27]Neubauer A, Pfeleiderer C, Ritz R, Niklowitz P G, Böni P 2009 *Physica B* **404** 3163
- [28]Hiraoka T, Suzuki M 1971 *J. Phys. Soc. Jpn.* **31** 1361

录用稿件，非最终出版稿



# Electrical transport properties of quasi-two-dimensional chiral magnetic material $\text{Cr}_{1/3}\text{TaS}_2$ under high pressure <sup>\*</sup>

Wang Xiangqi <sup>1)†</sup> Zhang Min <sup>2)</sup>

1) (School of Materials Science and Physics, China University of Mining and Technology, Xuzhou 221116, China)

2) (Institutes of Physical Science and Information Technology, Anhui University, Hefei 230031, China)

## Abstract

The chiral helimagnetic material  $\text{Cr}_{1/3}\text{TaS}_2$  features strong spin-lattice coupling effects and unique topological magnetic states, making it an ideal platform for exploring spintronics and quantum transport phenomena. In this study, high-quality  $\text{Cr}_{1/3}\text{TaS}_2$  single crystals were synthesized via the chemical vapor transport method. We systematically investigated the in-plane electrical transport and magnetoresistance evolution of the material over a broad pressure range of 0.6 to 34.0 GPa. High-pressure measurements were conducted using a diamond anvil cell with a standard four-probe configuration in a physical property measurement system, covering temperatures down to 2 K and magnetic fields up to 9 T. Our experimental results reveal a complex, pressure-induced evolution of the electronic and magnetic ground states. In the low-pressure regime (0.6–5.0 GPa), the material maintains robust metallicity, while the long-range magnetic ordering transition temperature  $T_C$  is significantly suppressed from ~150 K down to ~75 K, driven by enhanced interlayer coupling and modulated Ruderman-Kittel-Kasuya-Yosida interactions. As pressure increases to the intermediate range (7.0–20.0 GPa), the system exhibits an anomalous semiconductor-like transport behavior. However, the absolute resistivity remains on the order of a moderate conductor, suggesting that the scattering mechanism is dominated by weak localization effects or the opening of a pseudogap at the Fermi surface rather than a complete metal-insulator transition. Upon further compression above 23.0 GPa, extreme volume reduction induces severe band broadening, which overcomes the localization potentials and drives a re-entrant

transition back to a conventional metallic state. Crucially, magnetoresistance measurements reveal a distinct sign reversal from negative to positive at 13.0 GPa. This anomaly provides compelling evidence for a pressure-induced "spin collapse" effect, marking the dissolution of the long-range magnetic ordered state and the severe suppression of local magnetic moments. This work elucidates the pressure-dependent electronic landscape of  $\text{Cr}_{1/3}\text{TaS}_2$ , providing vital experimental insights into the intricate interplay among the lattice, charge, and spin degrees of freedom in intercalated van der Waals magnetic materials.

**Keywords:**  $\text{Cr}_{1/3}\text{TaS}_2$ , high-pressure electrical transport, chiral magnetism, magnetic phase transition, magnetoresistance effect

---

\* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 12504208) .

† Corresponding author: xiangqiwang@cumt.edu.cn  
The first author: xiangqiwang@cumt.edu.cn