
物理所在光激发VO₂超快电子相变和结构相变的动力学解耦研究中取得进展

作者：writer 来源：中国科学院

本文原地址：<https://www.iikx.com/news/progress/21594.html>

本文仅供学习交流之用，版权归原作者所有，请勿用于商业用途！

物理所在光激发VO₂

超快电子相变和结构相变的动力学解耦研

究中取得进展。二氧化钒（VO₂

）是一种典型的强关联材料。在温度约为3

40K时，VO₂会经历从绝缘性单斜相（M₁-VO₂）到金属性金红石相（R-VO₂

）的一级相变过程。强关联材料中电荷、晶格、轨道和自旋等自由度强烈地耦合在一起，这使得VO₂绝缘体-金属相变存在多种相变机制。超快激光脉冲通过激发固体材料的价电子可以快速改变原子的势能面，因此激光辐射已经成为一种诱导强关联材料相变的有效途径，比如激光辐射可以使M₁-VO₂

在500fs内发生非热的结构相变。但是实验上通常很难直接同时观测结构相变和绝缘体-金属相变中的超快原子和电子动力学，因此

对于VO₂的超快结构相变和绝缘体-

金属相变的相变机制，以及两种相变能否脱耦仍然存在巨大争议。

近日，中国科学院物理研究所/北京凝聚态物理国家研究中心表面物理国家重点实验室研究人员利用自主开发的激发态动力学模

拟软件TDAP，研究了激光诱导M₁-VO₂到R-VO₂的超快结构相变和绝缘体-金属相

变，揭示了超

快尺度上的非平衡相变机制

。激发态动力学模拟可以追踪光诱导VO₂结构相变和绝缘体-

金属相变的超快过程，直接证明飞秒尺度上两种相变的解耦合行为。

在这种动力学过程中，激光将M₁-VO₂ *d*

带上的价电子激发到导带上，*d*带上产生的空穴可以引起V-V对的扩张和V-V-V扭转角的增加，从而驱动M₁-VO₂到R-VO₂

的结构相变（图1、图2）。计算模拟得到的结构相变速率与激发强度的依赖关系，与超快实验数据符合得很好。基于杂化密度泛

函的激发态动力学模拟证明了在M₁-VO₂

构型下可以出现等同结构的绝缘体-

金属相变（图3）。M₁-VO₂

中
的空
穴会引起
间隙能级在带隙中
的填充，从而引起带隙的消失。更高
强度的光激发可以引起 d 带的明显上移。模拟得到的结构相变和绝缘体-金属相变的激发阈值基本
上是相同的，
而结构相变和电子相变存在
着数百飞秒的时间延迟，这导致了金属型 M_1 -VO₂瞬态和等同结构电子相变的出现（图4）。

该工作揭示了VO₂
超快结构相变和绝
缘体-
金属相变过程中不同的超快机制，澄清了
以往对于VO₂
是否存在等同原子结构的电子相变的争议，并提供了研究强关联材料非平衡动力学的新方法。

相关成果近期发表在*Science*
*Advances*上。研究工作受到国家重点研发计划、国家自然科学基金委和中科院的资助。

[论文链接](#)

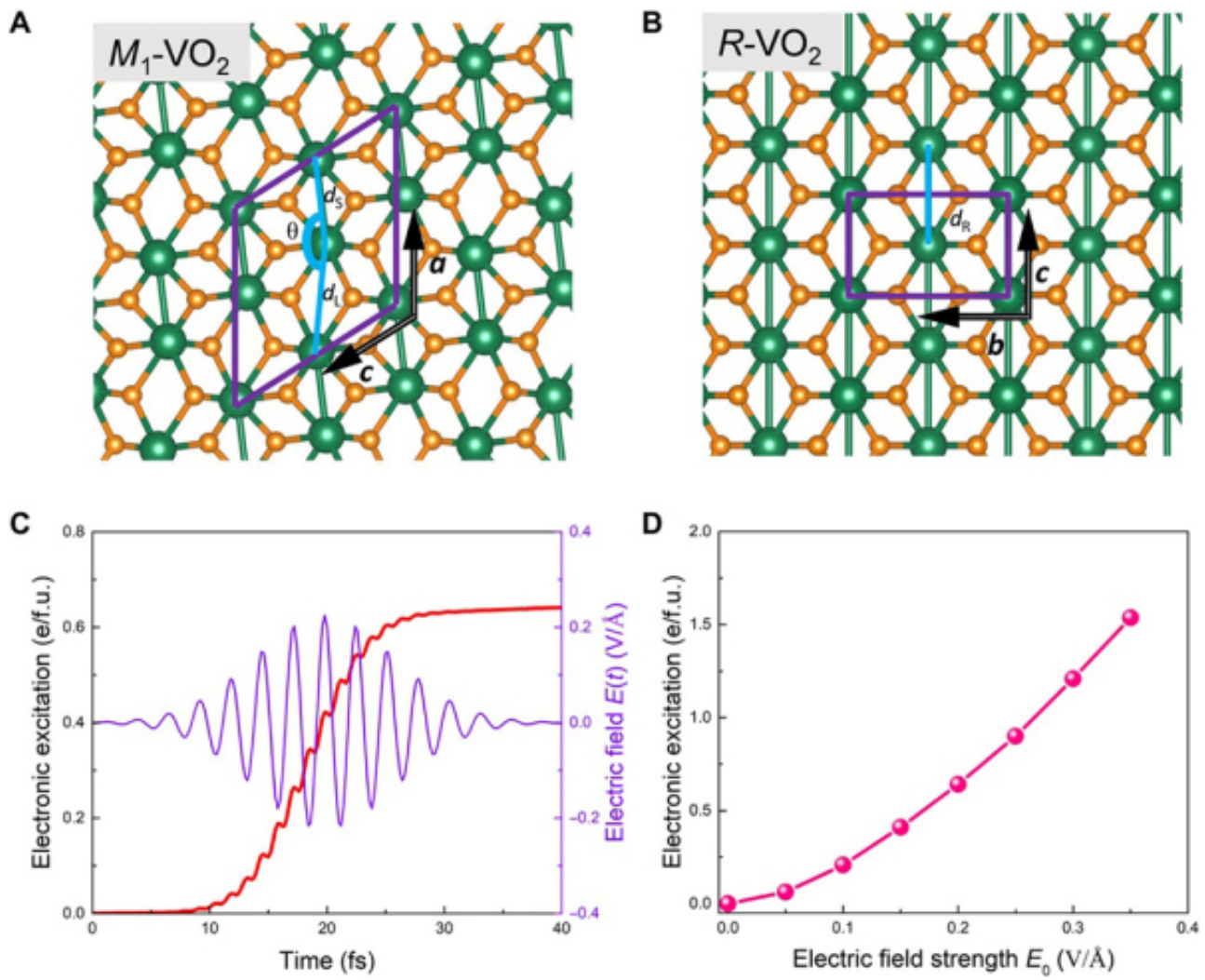


图1

VO_2

原子结构图和光激发电子跃迁过程。(A)

) 低温绝缘型 $M_1\text{-VO}_2$ 和 (B) 高温金属型 $R\text{-VO}_2$

的原子结构图。钒原子和氧原子分别以绿色和橙色显示。(C) 脉冲电场强度 E_0 为0.20

$\text{V/\AA}$ 的800nm激光脉冲, 以及其激发 $M_1\text{-VO}_2$

中的光生空穴密度随时间的演变。(D) 光激发有效空穴密度与激光脉冲电场强度 E_0 的关系。

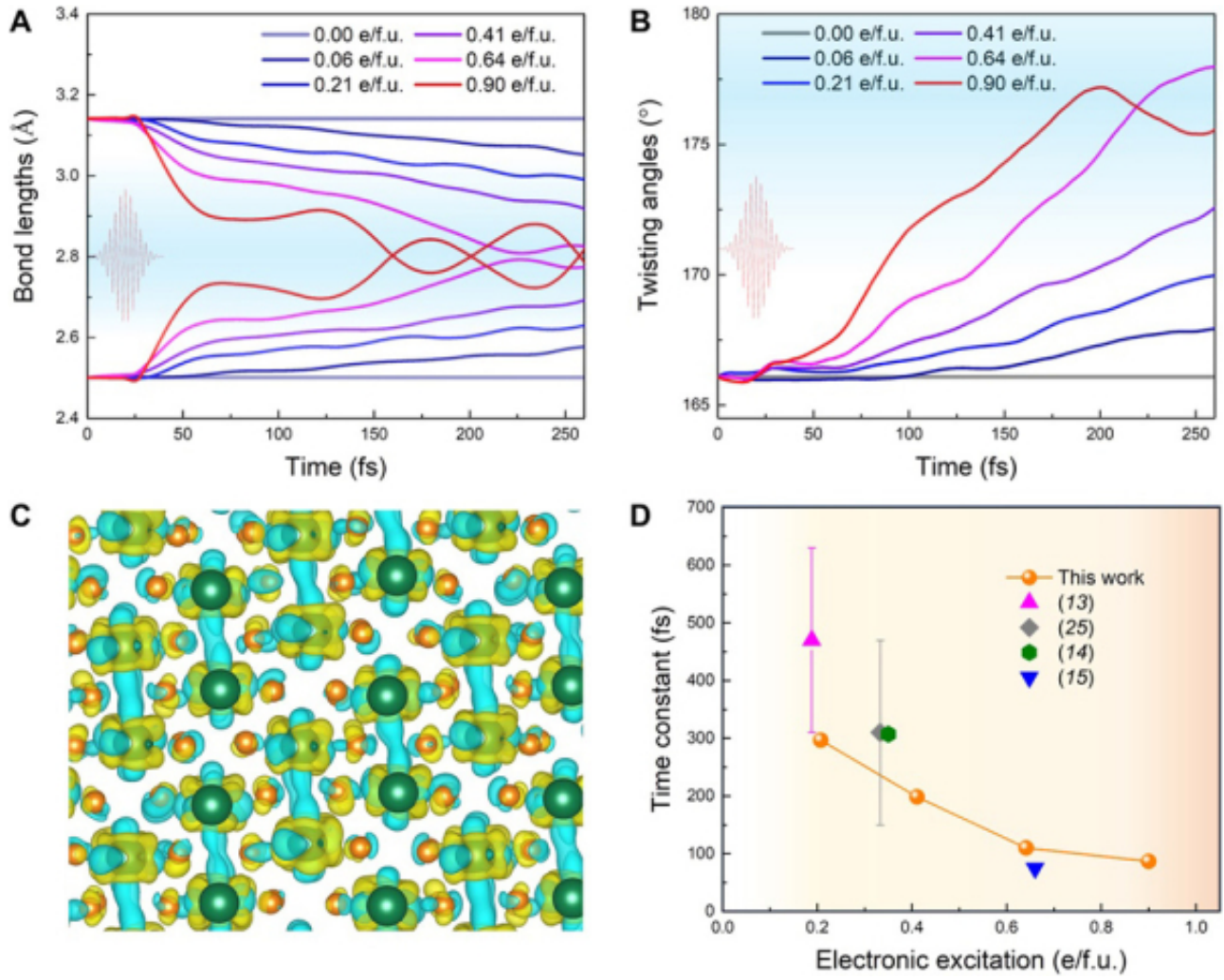


图2

光激发 M_1 -VO₂到 R -VO₂相变原子动力学。(A) 不同激发强度下V-V长键和V-V短键平均长度的时间演变。(B) 不同激发强度下平均V-V-V扭曲角的时间演化。(C) 0.64 e/f.u.激发强度下的差分电荷密度图。黄色区域对应于电子增加，青色区域对应于电子减少。(D) 光激发结构相变时间常数与实验数据的比较。

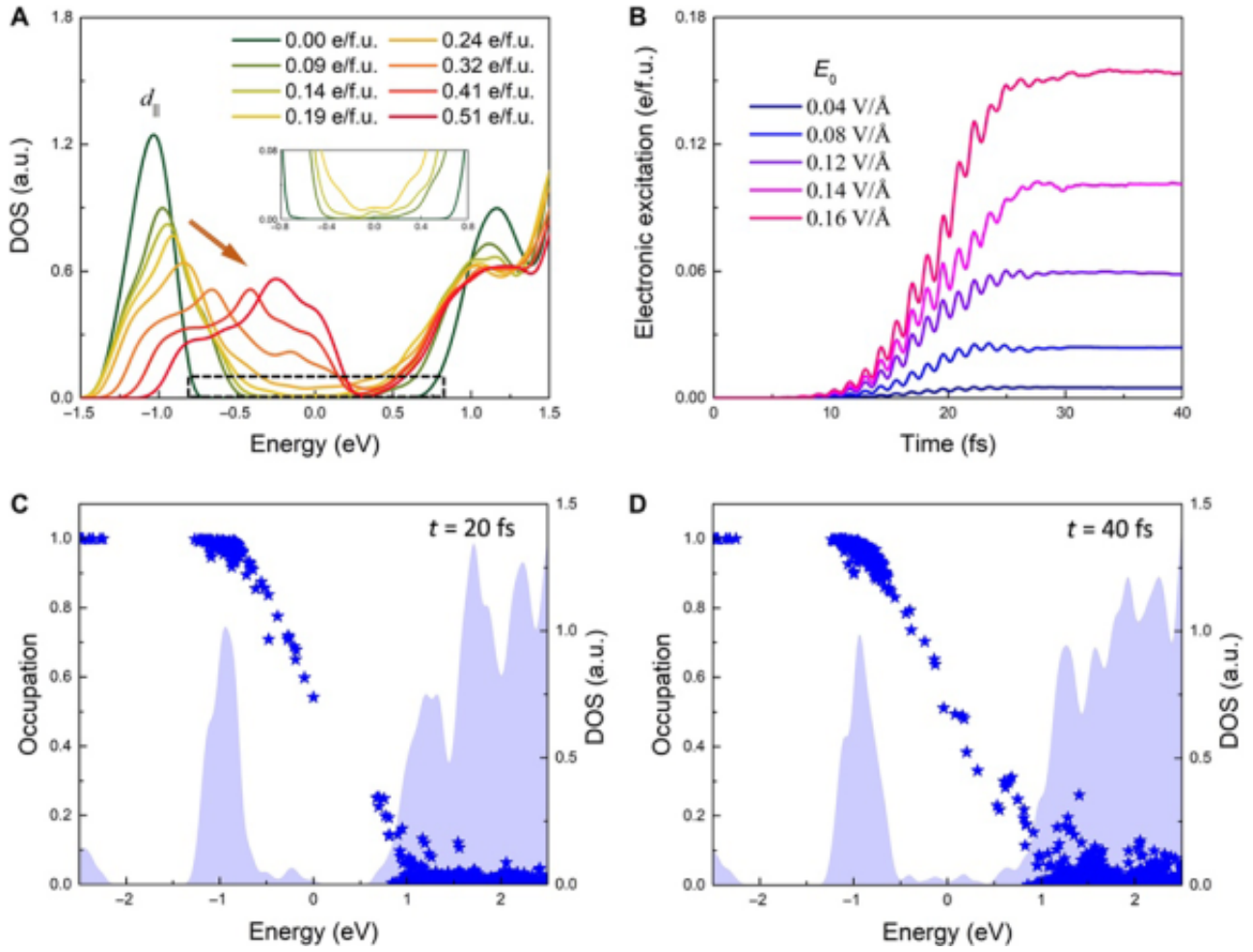


图3

光激发 M_1 -VO₂的电子动力学。(A) 不同激发强度下 M_1 -VO₂的电子态密度。(B) 杂化泛函非绝热模拟中电子激发量的演化。在 $E_0=0.14$ V/Å下 $t=20$ fs (C) 和 $t=40$ fs (D) 时的电子占据和态密度。

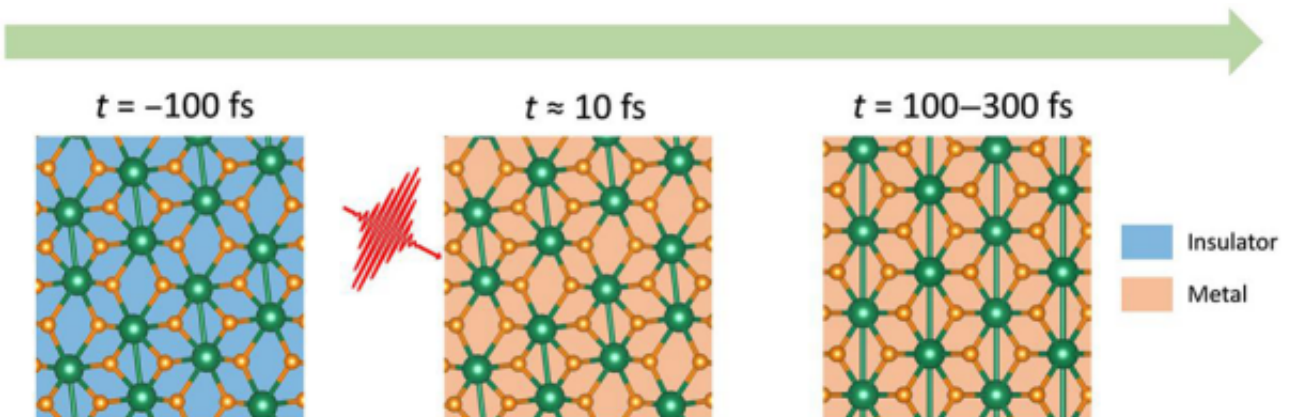


图4 光诱导 M_1 -VO₂超快相变示意图。初始的绝缘相 M_1 -VO₂ ($t = -100$ fs) 在 $t = 0$ fs时被激光脉冲激发。光激发诱导 M_1 -VO₂发生等同原子结构的绝缘体-金属相变 (10 fs内)，而结构相变在100至300 fs的时间尺度内发生。

研究团队单位：物理研究所

更多 科学进展 请访问 <https://www.iikx.com/news/progress/>

本文版权归原作者所有，请勿用于商业用途，[爱科学iikx.com](https://www.iikx.com)转发