

综述

关联氧化物电输运特性和磁学性质的设计与调控*

周轩弛^{1)2)†} 姚晓辉¹⁾ 乔晓梅¹⁾

1) (山西师范大学材料科学与工程学院, 磁性分子与磁信息材料教育部重点实验室, 太原 030031)

2) (山西师范大学材料科学研究院, 先进永磁材料与技术省部共建协同创新中心, 太原 030031)

(2026 年 3 月 4 日收到; 2026 年 3 月 31 日收到修改稿)

关联氧化物中多种自由度间复杂的关联耦合作用, 使其材料体系展现出有别于经典半导体的新奇量子物态和丰富的功能特性, 推动了新型磁电功能电子器件的研制. 构建关联氧化物体系中实空间电荷序、自旋磁序、动量空间能带结构、原子尺度晶格结构与宏观物性间跨尺度的内在关联, 为精准设计关联氧化物的电输运特性和磁学性质提供了可行的物理基础与研究路径. 本综述系统地总结了近期国内外研究团队在关联氧化物电输运特性和磁学性质设计与调控领域的最新研究进展, 聚焦能带占据与带宽控制的物态调控方法, 阐明非平衡态调控等新兴调控手段在关联氧化物新奇物性探索与创制中的关键作用, 旨在拓展关联氧化物体系电输运特性和磁学性质的设计思路和调控范围, 在关联氧化物体系孕育出更为丰富的磁电物态和器件应用.

关键词: 关联氧化物, 电输运特性, 磁学性质, 物态调控, 关联物理**DOI:** 10.7498/aps.75.20260319**CSTR:** 32037.14.aps.75.20260319

1 引言

关联氧化物中电荷、轨道、自旋及晶格等多种自由度间的关联、耦合与重构, 使其材料体系展现出丰富的新奇量子物态和功能特性, 如超导电性、金属-绝缘体转变及多铁性等^[1-4]. 建立关联氧化物体系中微观自由度的耦合作用与宏观物性间的构效关系, 可为利用多物理场激励精准调控其功能特性提供理论依据^[5]. 因而, 基于先进谱学和电镜技术, 构建关联氧化物中实空间电荷序、自旋磁序、动量空间能带结构与原子尺度晶格结构之间的内在关联, 为进一步推动电输运特性和磁学性质的可控设计与精准调控奠定基础^[6,7]. 关联氧化物材料中电子巡游性与局域化间的复杂竞争, 衍生出丰富的量子物态和金属-绝缘体转变 (MIT) 功能特性, 引发了凝聚态物理和材料科学领域的广泛关注^[8].

在关联量子材料物态调控领域, 带宽控制的物态调控方法与能带占据控制的物态调控方法已逐渐成为调控关联氧化物电输运特性和磁学性质的两大核心范式, 并在其材料体系中发现了丰富的新奇物态、非常规的物理图像及多学科交叉的器件应用, 如图 1 所示^[9-11].

带宽控制的物态调控方法通过操控与电子巡游性相关的动能项 (能带宽度 W) 和描述电子局域相互作用的势能项 (库仑排斥能 U) 间相对大小的变化关系, 实现对其电输运特性和磁学性质的有效调控. 基于界面应力、静水压力及高压等典型带宽控制的物态调控方法, 已在关联氧化物材料体系中孕育出丰富的结构转变和新奇物态^[12]. 与之相反, 能带占据控制的物态调控策略通过在关联氧化物能带结构中引入载流子掺杂, 调控能带占据进而触发轨道重构, 并同时操控磁相互作用, 驱动关联氧化物发生新型磁电转变^[13]. 尤为重要的是, 不同于

* 国家自然科学基金 (批准号: 52401240)、山西省基础研究计划 (批准号: 202403021212123) 和山西省高等学校科技创新项目 (批准号: 2024L145) 资助的课题.

† 通信作者. E-mail: xuanchizhou@sxnu.edu.cn

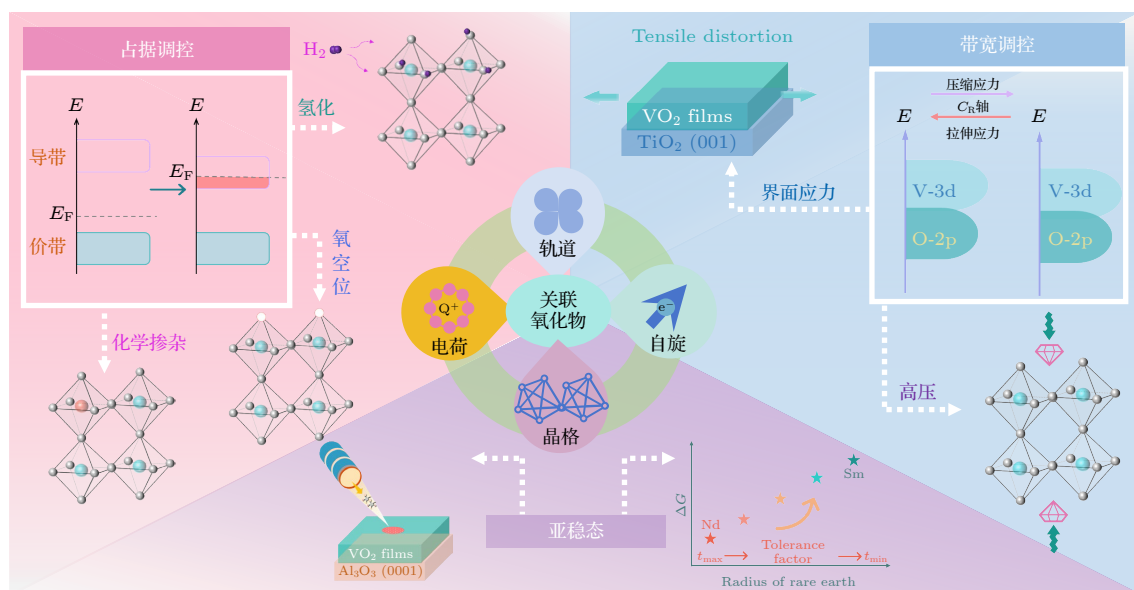


图1 关联氧化物电输运特性和磁学性质的设计与调控

Fig. 1. Design and manipulation of magnetoelectric transport properties in correlated oxides.

传统的经典半导体材料,载流子掺杂可触发关联氧化物的电子强关联效应,进而引发材料电学特性的剧烈变化,衍生出奇特的电子反掺杂物理,成为凝聚态物理的前沿基础性科学问题^[14].近年来,建立关联氧化物的热力学亚稳态,通过打破热力学平衡相图对其能带结构和自旋构型的固有约束,成为设计并调控其电输运特性和磁学性质的新兴手段^[15].构建关联氧化物的亚稳态,为研究材料体系中的新物态和新物理引入了非平衡态调控这一全新的功能调控自由度,突破传统材料研究的范式,在关联量子材料物态调控领域中展现出可观潜力^[16].

本文将综述近期关联氧化物磁电物态调控领域的最新研究进展,聚焦能带占据控制的物态调控方法^[17]、带宽控制的物态调控方法^[18,19]及热力学亚稳态关联氧化物^[20,21]等前沿研究方向,系统地总结可控设计并调控关联氧化物电输运特性和磁学性质的有效途径,阐明衍生出的丰富磁电功能特性及多学科交叉的离子电子学器件应用^[22],以期在关联氧化物材料体系中孕育出更为丰富的新物态、新物理与新器件应用.

2 能带占据控制的物态调控策略

能带占据控制的物态调控策略通过向关联氧化物中未占据的导带空态提供载流子,有效调控其电子占据态和轨道构型,触发关联氧化物材料发生

电子轨道重构.本小节将系统地阐述离子掺杂、替代式化学掺杂与缺陷工程等典型的能带占据控制的调控策略.

2.1 离子掺杂

传统上,利用高价过渡金属元素替代关联氧化物材料晶格格点处的母相原子,通常会在氧化物材料中引入电子载流子,反之则会引入空穴载流子.然而,传统的替代式化学掺杂不可避免地会在关联氧化物材料中引入晶格无序或晶格扭曲,当掺杂含量超过氧化物的固溶度极限时,则会造成两相分离^[23,24].因此,替代式化学掺杂调控关联氧化物材料物性的能量尺度受到材料固溶度极限以及晶格无序的本征限制^[25].

通过向关联氧化物晶格中掺杂具有较小离子半径的可移动离子(如,氢离子或锂离子),可有效地触发电荷、自旋、轨道及晶格等多重自由度的耦合与重构,从而在材料体系中诱导出丰富的电子相变和新奇物性,为实现关联氧化物材料物态的可逆调控与更高能量尺度的物性设计提供了新方案^[26,27].近年来,基于氢溢出法、离子液体门控法、电化学掺杂及金属-酸溶液协同反应等多种策略,已成功在 VO_2 , ReNiO_3 , $\text{SrCoO}_{2.5}$, SrRuO_3 及 NiCo_2O_4 等体系中实现质子的可逆嵌入与脱出,成为关联氧化物材料物态调控的重要新兴手段^[28,29].从莫特-哈伯德物理机制来讲,氢化调控的本质是

通过引入电子载流子改变体系的能带占据,从而调控有效关联强度 U 的大小,实现对金属-绝缘体相变的调控.当氢原子以 H^+ 形式进入氧化物晶格时,每个氢原子贡献一个电子.相较于传统替代式化学掺杂,氢化引入的氢原子会占据强关联氧化物晶格的间隙位置,不仅能够突破固溶度限制,实现更大尺度的载流子浓度调控,还可借助氢与晶格氧之间的相互作用诱导局域结构畸变,进而通过离子-电子-晶格之间的耦合,在平衡相图之外开辟出全新的电子态演化路径.

上述氢化调控机制在典型关联氧化物 VO_2 材料中得到了系统而深入的验证.例如, Liu 等^[30]通过氢溢出法在 VO_2 薄膜中实现了质子的可控嵌入,并系统地研究了氢含量对 VO_2 结构相变和电子输运特性的影响.随着氢含量的不断变化,成功诱导出绝缘体-金属-绝缘体三重物相调控,并借助原子尺度结构解析与理论计算,将 VO_6 八面体旋转角 β 与电子掺杂水平绘制成二维相图,结果表明:在无电子掺杂仅存在晶格畸变的情况下,随着 VO_6 八面体角 β 增大, VO_2 从原始绝缘相转变为金属相;进一步增强晶格畸变则会触发 Peierls 相变,使体系恢复绝缘相,如图 2(a)–(c) 所示.相反地,在无晶格畸变仅有电子掺杂的情况下, VO_2 从绝缘相转变为金属相,直至 Mott 转变使体系恢复绝缘态.值得注意的是, VO_2 协同掺杂同时引入晶格畸变和电子电荷,因此在相图上沿对角线演化,同时实现了对电子相变与结构相变的解耦.

如何从材料微结构设计角度出发,加速氢离子的扩散过程,是进一步提高质子基关联电子器件响应速率的关键.本课题组^[31]通过人工微结构设计倾斜的畴界,在 VO_2 薄膜中构筑了一条氢离子扩散的“快速通道”,显著地加速了氢化动力学过程.通过在不同晶体取向的 Al_2O_3 和 TiO_2 衬底上外延生长 VO_2 薄膜,实现了对畴结构与晶体取向的人工调控,如图 2(d)–(f) 所示.高分辨透射电子显微镜表征显示,沉积在 c 面 Al_2O_3 衬底上的 VO_2 薄膜呈现出垂直于界面的畴结构,而沉积于 r 面上的 VO_2 薄膜成功诱导出 45° 的倾斜畴界.通过对畴结构的精巧设计,为研究氢化动力学提供了理想的平台.在相同氢化条件下, r 面上的 VO_2 薄膜表现出更快的氢化响应速率,同时电阻开关比 (R_0/R_H) 提升近一个数量级.飞行时间二次离子质谱则进一步揭示了氢离子在薄膜中的空间分布,在 r 面上生

长的 VO_2 薄膜观察到异常的上坡扩散现象.这一发现表明倾斜畴界和 c_R 轴的择优取向共同构筑了氢扩散的“快速通道”,使氢离子能沿着势垒低的路径快速注入晶格,突破传统扩散动力学的限制.

除 VO_2 体系外,稀土镍酸盐 $ReNiO_3$ 作为另一类典型的负电荷转移型莫特绝缘体,同样对氢化调控展现出高度敏感的响应特性,如图 2(g)–(i) 所示.与 VO_2 中氢化主要调控 d 轨道占据不同, $ReNiO_3$ 的氢化过程往往伴随着 NiO_6 八面体畸变的演化以及电荷转移能 Δ 的调制,呈现出更为丰富的电子相变行为.在相变温度处, $ReNiO_3$ 中的 Ni^{3+} 离子发生电荷歧化,引发 $Ni-3d$ 轨道与 $O-2p$ 轨道间的库仑相互作用,触发金属-绝缘体转变.当氢离子插入 $ReNiO_3$ 晶格时,一方面通过电子掺杂改变 Ni 的价态和轨道占据,另一方面通过 $O-H$ 键形成诱导局域晶格畸变,两者协同作用导致丰富的电子相变行为.

为进一步揭示氢化调控 $ReNiO_3$ 电子相变的微观物理机制, Gao 等^[32]在 $NdNiO_3$ 薄膜体系中,借助离子液体门控技术实现了电场可控的氢离子插入晶格,并结合扫描透射电子显微镜与同步辐射 X 射线吸收谱,系统地研究了氢化诱导的晶格畸变与电子结构演化.通过开尔文探针力显微镜测量选择性氢化区域表面形貌,可以发现氢化后薄膜厚度膨胀约 12.4%,同时氢化区域与原始区域之间存在巨大的电阻差异,氢化区呈现高电阻绝缘态,而原始区为低电阻金属态,对应的导电轮廓进一步证实了这一显著的电学性质调制.厘清氢离子与氧离子双协同作用及其对电子相变的影响,对于全面理解镍酸盐体系中的氢化调控机制至关重要. Guasco 等^[33]以 $LaNiO_3$ 薄膜为研究对象,借助原位输运测量、中子反射率与同步辐射 X 射线吸收谱相结合的手段,系统地研究了氢气暴露下 $LaNiO_3$ 的结构与电子态演化.通过原位中子反射率测量,揭示了氢化过程中 $LaNiO_3$ 薄膜散射长度密度随时间的演化.利用氢和氘的同位素对比,可精准确定薄膜吸收的氢含量.通过薄膜厚度膨胀和 SLD 降低,可以发现氢化过程伴随着显著的氧脱出,氢离子与氧离子的双协同作用共同决定了最终产物的结构与物性,并通过总结 $LaNiO_3$ 氢化反应循环的物理图像,揭示了镍酸盐氢化过程中氢氧双离子协同演化的复杂路径,为理解其电子相变机制提供了新的视角.

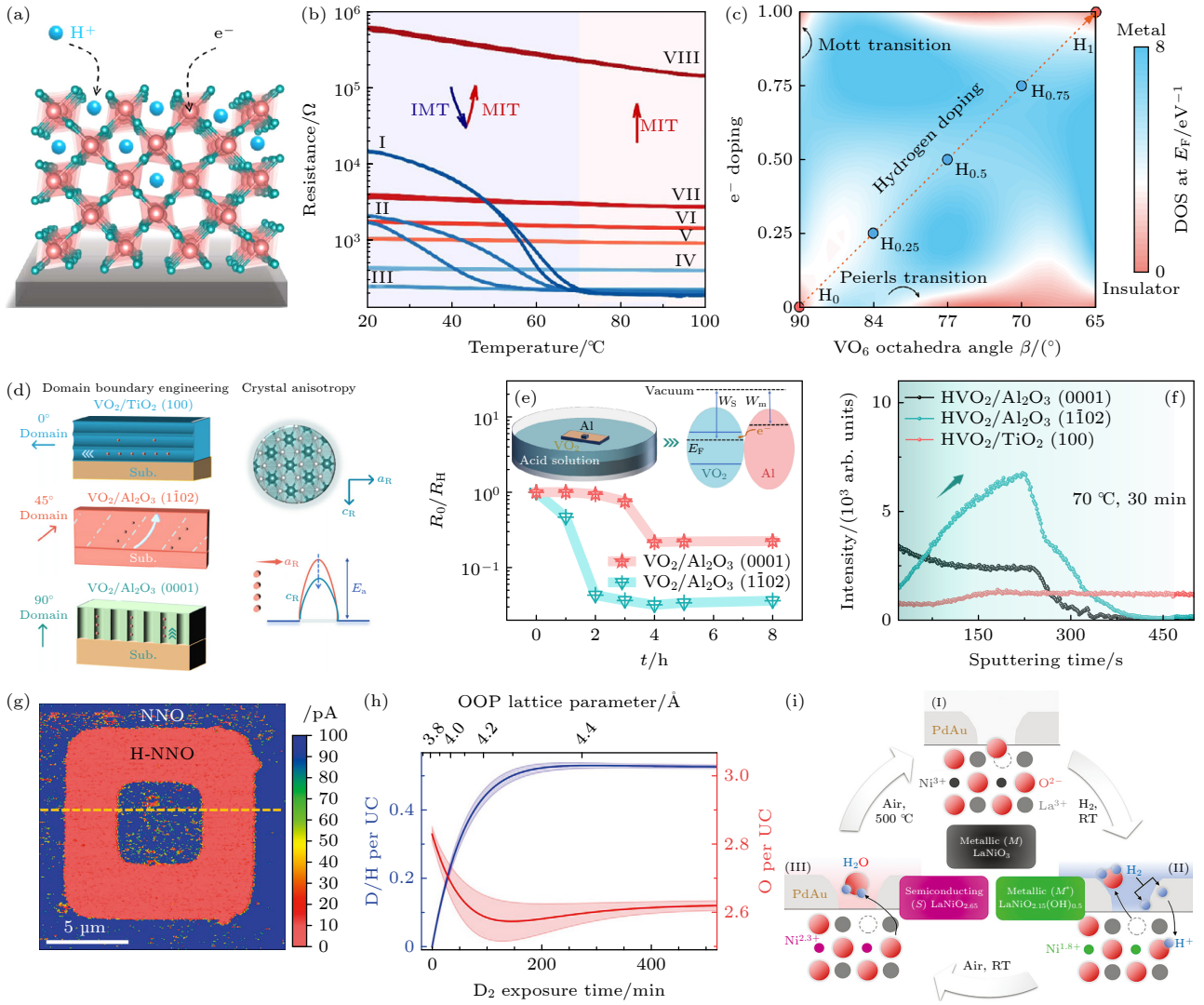


图2 氢化调控关联氧化物的电子相变特性 (a) VO_2 薄膜氢化示意图^[30]; (b) 氢化触发的 VO_2 薄膜的物态调控^[30]; (c) VO_6 八面体旋转角和电子掺杂水平的二维相图^[30]; (d) VO_2 薄膜人工微结构畴界设计示意图^[31]; (e) 沉积在 c 面和 r 面上的 VO_2 薄膜的 R_0/R_H 随时间演变曲线^[31]; (f) 不同畴结构设计下氢化 VO_2 薄膜中氢离子浓度对比图^[31]; (g) NdNiO_3 薄膜中电导率随氢离子插入的变化^[32]; (h) LaNiO_3 薄膜中氢和氧随时间的变化图^[33]; (i) LaNiO_3 薄膜氢化反应循环的物理图像^[33]

Fig. 2. Modulation of phase transition properties in correlation oxide thin films by hydrogenation: (a) Schematic diagram of VO_2 film hydrogenation^[30]; (b) hydrogenation-triggered state tuning in VO_2 thin films^[30]; (c) phase diagram of VO_6 octahedral rotation angle as a function of electron doping level^[30]; (d) schematic of artificial domain boundary engineering in VO_2 thin films^[31]; (e) time-dependent R_0/R_H evolution of VO_2 thin films on c -plane and r -plane Al_2O_3 substrate^[31]; (f) comparative hydrogen distribution across engineered domain structures in VO_2 thin films^[31]; (g) evolution of electrical conductivity in NdNiO_3 thin films with hydrogen ion intercalation into the lattice^[32]; (h) evolution of hydrogen and oxygen in LaNiO_3 thin films with time^[33]; (i) physical picture of the hydrogenation reaction cycle in LaNiO_3 thin films^[33].

氢离子掺杂不仅能够调控关联氧化物材料的电子态演化, 还可通过调控材料体系的磁相互作用和自旋构型, 实现对其磁学性能的有效操控. 拉应力状态下的 LaCoO_3 薄膜作为高温铁磁绝缘体, 受到研究人员的广泛关注和探索. Wei 等^[34] 利用氢相关的拓扑还原实现了 LaCoO_3 向 $\text{HLaCoO}_{2.5}$ 的拓扑化学转变, 通过密度泛函理论计算证实了引入的氢原子形成氢阴离子并占据氧空位, 如图 3(a)

和图 3(b) 所示. 氢化 $\text{LaCoO}_{2.5}$ 具有显著的高温铁磁性 (380 K 下为 $0.47\mu_B/\text{Co}$), 居里温度超过 400 K, 其高温铁磁性的起源与四面体高自旋态 Co^{2+} 和八面体高自旋态 Co^{3+} 之间的双交换作用有关. 反尖晶石结构 NiCo_2O_4 材料因具有室温垂直磁晶各向异性的亚铁磁金属基态, 备受氧化物自旋电子学和电催化等凝聚态物理和材料科学领域的广泛关注. 近年来, 研究者们利用离子液体门控技术, 在一定

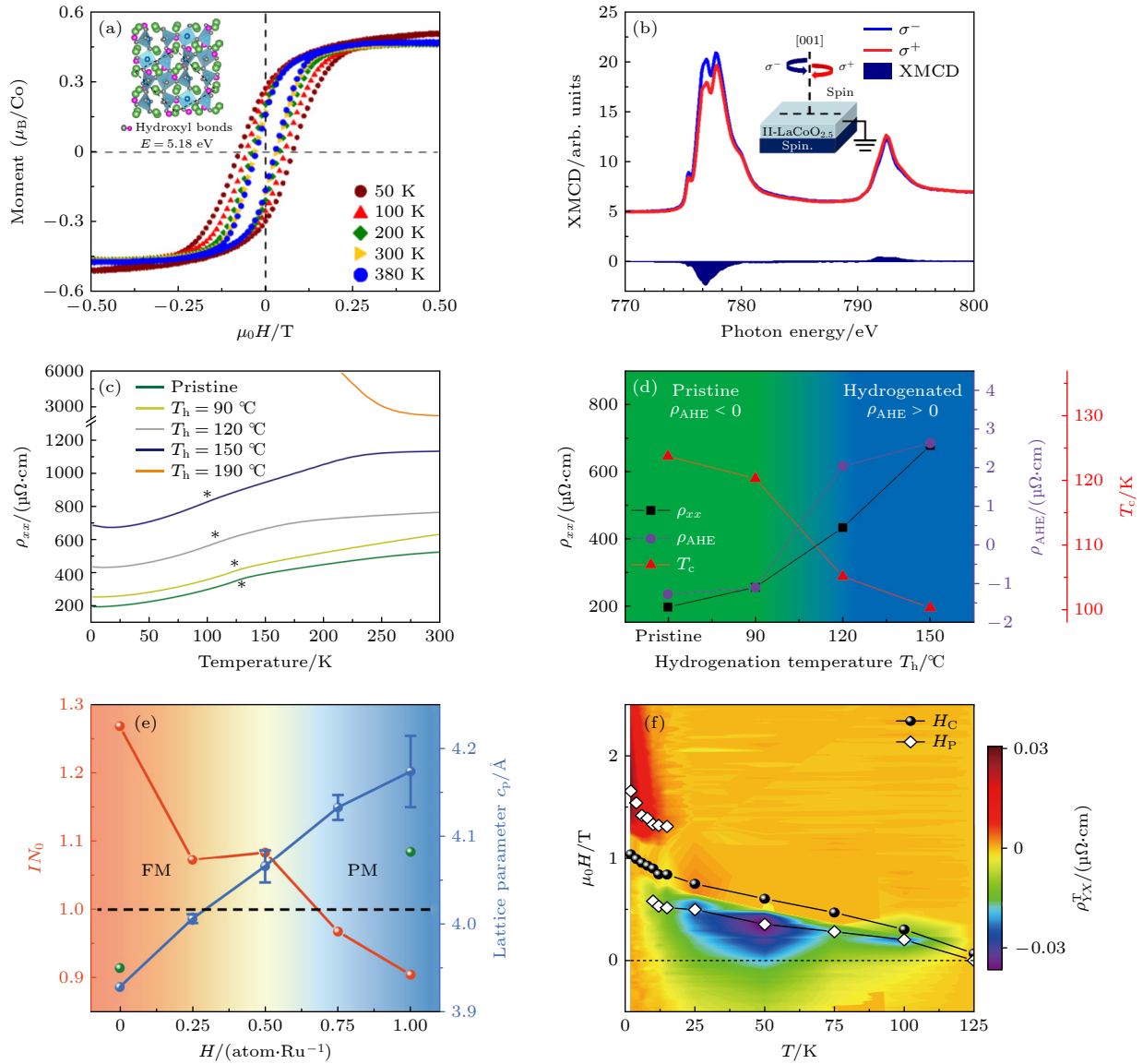


图3 氢化调控镍酸盐的相变特性 (a) 不同温度下的 $\text{HLaCoO}_{2.5}$ 薄膜的磁滞回线 [34]; (b) 室温下 $\text{HLaCoO}_{2.5}$ 薄膜的 Co $L_{2,3}$ -边的 X 射线磁圆二色性图谱, 插图为 XMCD 的测量示意图 [34]; (c) 氢化触发的 SrRuO_3 薄膜的电输运行为的调制 [37]; (d) 纵向电阻与反常霍尔电阻随氢化温度的变化相图 [37]; (e) Stoner 参数和 c 轴晶格常数随氢浓度的演化关系图 [38]; (f) 氢化相 SrRuO_3 薄膜的拓扑霍尔电阻率相图 [38].

Fig. 3. Modulation of phase transition properties in nickelates by hydrogenation: (a) The $M-H$ loops as measured for $\text{HLaCoO}_{2.5}$ at various temperature [34]; (b) the XMCD spectra for the Co $L_{2,3}$ -edge of hydrogenated $\text{LaCoO}_{2.5}$ measured at room temperature, where the inset shows a schematic of the measurement geometry of XMCD [34]; (c) hydrogenation-triggered modulation of the electrical transport behavior in SrRuO_3 films [37]; (d) phase diagram of longitudinal resistance and anomalous Hall resistance as a function of hydrogenation temperature [37]; (e) evolution of the Stoner parameter and c -axis lattice constant with hydrogen concentration [38]; (f) phase diagram of the topological Hall resistivity in hydrogenated SrRuO_3 films [38].

温度场的辅助下实现了 NiCo_2O_4 薄膜材料的有效氢离子掺杂. 氢离子掺杂可诱导 NiCo_2O_4 薄膜沿面外方向发生晶格膨胀以及 Ni 离子和 Co 离子价态的降低, 进而导致铁磁金属态到反铁磁绝缘态的丰富磁电转变及其反常霍尔效应的有效调制 [35,36]. SrRuO_3 作为典型的 4d 轨道关联氧化物磁性材料, 因其丰富的磁电性质和自旋-轨道耦合特性而成为

凝聚态物理研究的热点 [37]. 正如图 3(c) 和图 3(d) 所示, 通过氢溢出法可在 SrRuO_3 薄膜中实现氢的可逆注入, 随着氢化温度升高, 样品电阻率逐渐增大, 从金属性演变为绝缘性输运行为, 同时居里温度 T_C 逐渐降低, 反常霍尔效应 (AHE) 的符号也从负号变为正号, 在完全氢化时, 反常霍尔消失, 表明进入顺磁态 [37]. Li 等 [38] 通过离子液体门控技

术在 SrRuO_3 薄膜中实现了电场可控的质子演化, 并通过第一性原理计算得到的 Stoner 参数和 c 轴晶格常数随氢浓度的演化关系, 随着氢浓度增加, IN_0 值逐渐降低 (I 为 Stoner 参数; N_0 为费米能级处的电子态密度), 当 $IN_0 < 1$ 时体系从铁磁态转变为顺磁态, 并发现质子浓度梯度可诱导拓扑霍尔效应. 如图 3(e) 和图 3(f) 所示, 氢化后样品的 SHG 信号显著增强, 表明反演对称性被破坏. 与传统的静电门控或界面工程相比, 质子浓度梯度诱导的拓扑霍尔效应具有更宽的工作温区和可逆调控的特点, 为拓扑自旋电子学器件的设计提供了新思路.

替代式化学掺杂作为调控关联氧化物电输运特性和磁学性质的传统方法之一, 通过向关联氧化物晶格中引入异价过渡金属离子, 实现载流子浓度调制与晶格畸变, 从而调控体系的电子能带结构. 以 VO_2 材料为例, 通常情况下高价阳离子 (如, W^{6+} , Mo^{6+} 和 Nb^{5+}) 掺杂可视为电子供体, 其引入的额外电子进入 V-3d 导带, 通过能带填充效应提升其金属相的相对稳定性, 进而降低 MIT 的转变温度. 在关联 VO_2 体系中, W^{6+} 掺杂是降低其相变温度, 满足关联电子器件室温应用最直接有效的手段之一^[39]. 如图 4(a) 和图 4(b) 所示, 随着 W^{6+} 掺杂浓度的增大, VO_2 的金属-绝缘体转变温度 T_{MIT} 逐渐被抑制; 当掺杂浓度达到 0.08—0.09 时, MIT 特性消失, 变成金属态; 进一步增加掺杂浓度至 0.33, 体系又重新变成绝缘态, 这与氢化实现的绝缘态-金属态-高度绝缘态的多态电子相变相似. Yajima 等^[40] 进一步通过构建 $\text{VO}_2 (N \text{ uc})/\text{V}_{1-x}\text{W}_x\text{O}_2 (N \text{ uc})$ 异质结构, 揭示了化学掺杂诱导的局域调制与集体相变之间的关联. 当 N 较大时, 双层结构呈现两个分离的转变, 随着 N 减小, 两个转变温度逐渐靠近, 在 $N = 15 \text{ uc}$ 处合并为单一的集体转变, 如图 4(c) 所示. 这一现象表明, 当体系尺寸小于某一特征长度时, 局域掺杂调制可诱导体系的集体响应. 在 V_2O_3 中, Cr 掺杂同样展现出对电子相变的有效调控. Cr^{3+} 替代 V^{3+} 可视为施加“负压力”, 通过改变电子关联强度和带宽, 诱导体系从顺磁金属相进入顺磁绝缘相^[41]. 在稀土镍酸盐 ReNiO_3 中, 化学掺杂通过调控 A 位稀土离子半径, 实现对电子相变的宽范围连续调控. 随着稀土离子半径减小, NiO_6 八面体更加扭曲, Ni—O—Ni 键角减小, Ni-3d 与 O-2p 轨道重叠减弱使金属-绝缘体转变温度 T_{MIT} 从 130—460 K 的宽温域内连

续可调, 如图 4(d) 和图 4(e) 所示^[42].

2.2 氧空位设计

氧化学计量比设计作为关联氧化物缺陷工程调控磁电物态的典型方法, 通过驱动关联氧化物材料发生拓扑结构转变, 为探索材料体系的新奇磁电转变开辟了全新的路径. 本课题组通过高真空退火策略, 在 VO_2 薄膜中实现了氧空位的有序调控, 首次展示了连续的 $\text{VO}_2\text{-VO}_{2-x}\text{-V}_2\text{O}_3$ 拓扑结构转变路径^[43]. 如图 5(a) 所示, 随着氧空位的引入, VO_2 的 MIT 特性被逐渐抑制, T_{MIT} 向室温移动, 空位相关的电子掺杂诱导 VO_2 发生金属化; 进一步的氧空位有序可将 VO_2 母相拓扑化学还原成为 V_2O_3 薄膜, 通过氧空位有序在 VO_2 体系中实现两步 $\text{VO}_2\text{-VO}_{2-x}\text{-V}_2\text{O}_3$ 拓扑相变, 并在宽温域内获得高度可调的 MIT 行为. Li 等^[44] 通过将氢离子掺杂引入 VO_{2-x} 体系, 发现氢化能够显著降低氧空位的迁移势垒, 为理解间隙离子-点缺陷间的相互作用提供了新视角, 如图 5(b) 和图 5(c) 所示. Kotiuga 等^[45] 系统地研究了氧空位对 SmNiO_3 和 NdNiO_3 电子输运特性的影响, 揭示了镍酸盐中氧空位诱导的载流子局域化现象, 如图 5(d) 所示. 根据 $\text{SmNiO}_{3-\sigma}$ 薄膜室温电阻率随氧空位浓度 σ 的变化关系可知: 随着 σ 从 0 增加至 0.41, 电阻率增加近 7 个数量级, 呈现出显著的载流子局域化效应. Li 等^[46] 利用离子液体门控技术将质子注入具有钙钛矿结构的 $\text{SrCoO}_{2.5}$ 晶格中, 获得 $\text{HSrCoO}_{2.5}$. 随后在 350 °C 真空中脱水, $\text{HSrCoO}_{2.5}$ 中的质子与氧空位结合以 H_2O 形式脱出, 同时由于晶格氧的脱离, 驱动了从八面体配位向四面体配位的结构转变, 最终获得晶格常数显著收缩的 SrCoO_2 , 如图 5(e) 所示. 这一工作展示了电化学质子化结合热脱水作为获得强还原氧化物的有效策略, 通过氧空位有序与质子脱出的协同作用, 实现了从钙钛矿到无限层的结构维度跨越.

氧空位的有序排列往往伴随着更为丰富的结构转变与磁电耦合效应. 例如, 氧空位有序驱动的钙钛矿-钙铁石-无限层结构间的拓扑化学转变, 为探索新奇量子物态提供了理想平台. Yan 等^[42] 利用离子液体门控技术, 对具有水平取向和垂直取向的氧空位薄膜 SrFeO_3 薄膜进行了氢化, 高分辨 X 射线衍射分析显示, 具有水平取向 BMh- $\text{SrFeO}_{2.5}$ 薄膜氢化后比垂直取向 BMv- $\text{SrFeO}_{2.5}$ 薄膜的衍射

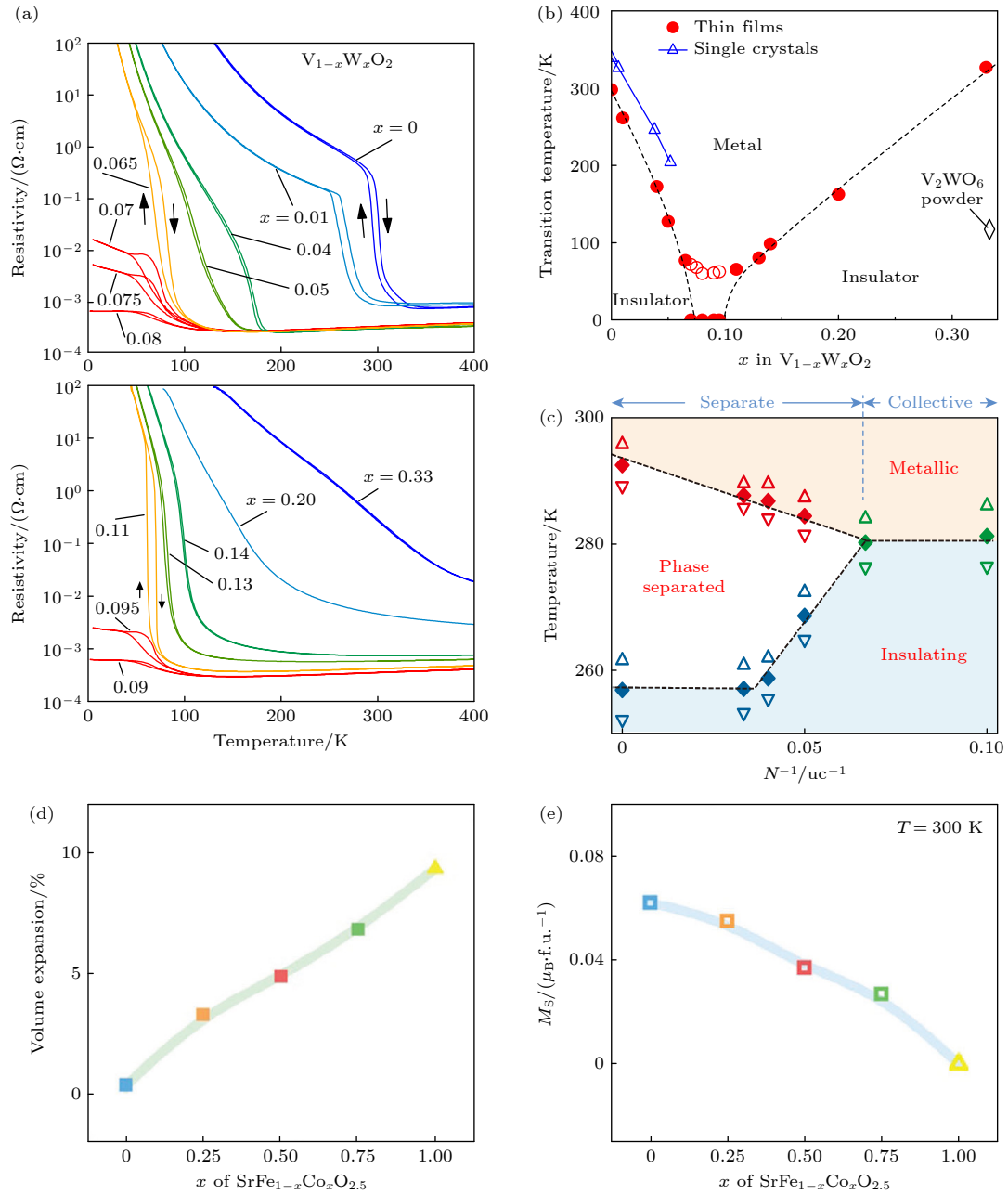


图 4 化学掺杂调控关联氧化物的输运特性 (a) W 掺杂调控 VO_2 的电学性质^[39]; (b) W 掺杂下的 VO_2 金属-绝缘体转变相图^[39]; (c) 金属-绝缘体转变的集体行为和分立行为相图^[40]; $\text{SrFe}_{1-x}\text{Co}_x\text{O}_{2.5}$ 体系的 (d) 晶格膨胀和 (e) 室温饱和磁化强度随 Co 掺杂含量的变化关系图^[42]

Fig. 4. Modulation of transport properties in correlated oxides by chemical doping: (a) W doping modulation of the electrical properties of VO_2 films^[39]; (b) phase diagram of the metal-insulator transition in VO_2 under W doping^[39]; (c) phase diagram of collective and separate behavior in the metal-insulator transition^[40]; (d) the lattice expansion and (e) room-temperature M_s for $\text{SrFe}_{1-x}\text{Co}_x\text{O}_{2.5}$ ^[42].

峰移动更多, 表明垂直取向 BMv- $\text{SrFeO}_{2.5}$ 薄膜难以实现氢离子掺杂诱导的结构演化. 如图 5(f) 所示, 氢离子注入可有效地调控 $\text{SrFeO}_{2.5}$ 的磁基态, 使其从反铁磁有序转变为具有净磁矩的铁磁态, 并且该铁磁序在室温以上仍可保持, 充分展现了氧空位有序在调控关联氧化物磁学特性方面的重要

作用.

2.3 电荷转移

氧化物异质结中电荷转移所诱导的界面载流子浓度变化与轨道重构, 能够精确调控费米能级位置与电子结构, 从而为在强关联氧化物体系中利用

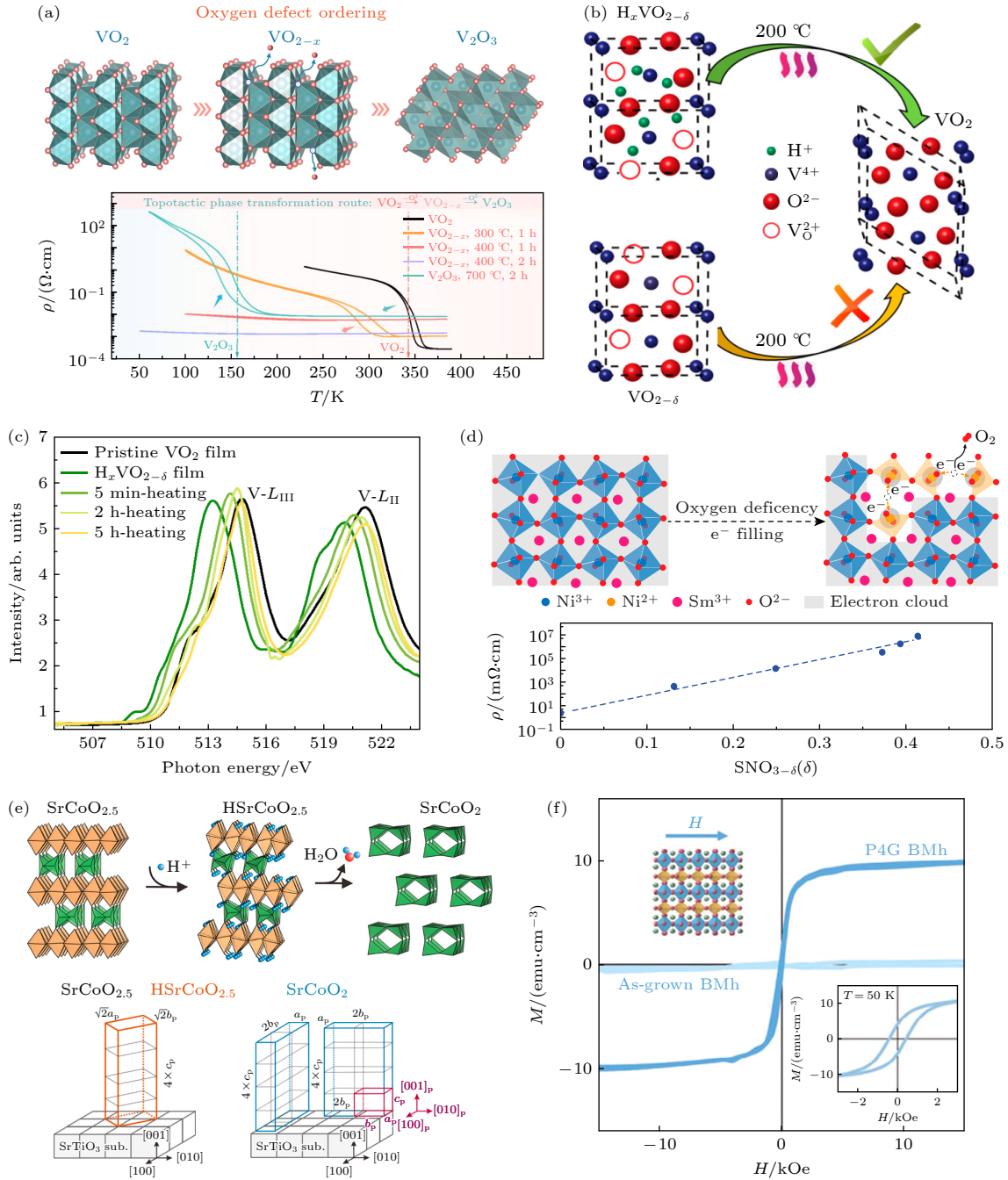


图 5 氧空位调控关联氧化物的物理性质 (a) VO₂ 薄膜在氧空位有序下的结构及电学输运演变^[43]; (b) 氢辅助下 VO_{2-x} 薄膜的热脱水示意图^[44]; (c) 热脱水下 V 边的同步辐射 X 射线吸收谱^[44]; (d) 氧空位影响下稀土镍酸盐的结构和电学性质的变化图^[45]; (e) 氧空位形成对 SrCoO_{2.5} 薄膜的结构影响^[46]; (f) 氢化前后 SrFeO_{2.5} 薄膜磁化强度的变化^[42]

Fig. 5. Modulation of physical properties in correlated oxides by oxygen vacancies: (a) Evolution of structural and electrical transport properties in VO₂ films under oxygen vacancy ordering^[43]; (b) schematic illustration of thermal dehydration of VO_{2-x} films assisted by hydrogen^[44]; (c) X-ray absorption spectra at the V-edge during thermal dehydration^[44]; (d) evolution of structural and electronic properties of rare-earth nickelates with oxygen vacancies^[45]; (e) structural effect of oxygen vacancy formation in SrCoO_{2.5} thin films^[46]; (f) effect of hydrogenation on the magnetization of SrFeO_{2.5} thin films^[42].

占据控制调控策略实现电输运特性和磁学性质的功能化设计提供了一条可行的研究路径. 与化学掺杂所引入的晶格无序与结构畸变不同, 电荷转移可在原子尺度上实现对氧化物材料可逆的纯载流子

掺杂, 进而驱动金属-绝缘体转变、磁序重构乃至超导等新奇量子态的出现. 例如, 在 LaAlO₃/SrTiO₃ 关联氧化物异质结的极性界面处, 电子由 LaAlO₃ 层转移至 SrTiO₃ 层, 形成高迁移率二维电子气, 并

伴随超导与铁磁性的共存行为^[47], 这一现象后续在 EuO/KTaO_3 等关联氧化物异质结界面处也被观测到^[48–52]; 在锰氧化物超晶格 ($\text{LaMnO}_3/\text{SrMnO}_3$) 中, 电子由 LaMnO_3 层转移至 SrMnO_3 层, 通过调控 $\text{Mn}^{3+}/\text{Mn}^{4+}$ 间的双交换作用, 进而实现对铁磁-反铁磁转变与巨磁电阻行为的有效控制^[53–56]; 在镍酸盐/铜酸盐异质结中, 电荷由铜酸盐层转移至镍酸盐层, 诱发 $\text{Ni}^{3+}/\text{Ni}^{2+}$ 价态变化与轨道重构, 驱动金属-绝缘体转变与磁性转变^[57–59]. 近期, 研究者通过原子级精度构筑的 $(\text{LaNiO}_3)_n/(\text{LaFeO}_3)_1$ 超晶格, 实现了从反铁磁 LaFeO_3 层向顺磁金属 LaNiO_3 层的可控电荷转移^[60]. X 射线吸收谱分析明确显示出 Ni 价态向 Ni^{2+} 的显著偏移, 证实了电子由 LaFeO_3 层向 LaNiO_3 层的定向转移. 当 $n = 1$ 时, 该超晶格形成了 B 位层状有序的 $\text{La}_2\text{FeNiO}_6$ 双钙钛矿结构, 饱和磁化强度高达 $4\mu_{\text{B}}/\text{u.c.}$, 居里温度高达 608 K. 磁性强度与电荷转移量之间存在明确的厚度依赖性, 随 n 增大电荷转移减弱, 磁性相应降低. 该研究不仅证明了原子级异质结中电荷转移可诱导出超越体材料的高温铁磁序, 更揭示通过调控超晶格周期与界面化学计量, 可将电荷转移长度限定在 1—2 个单胞的短程范围内, 从而实现磁电耦合强度的空间精密设计^[60]. 除此之外, 在磁性氧化物异质结中, 磁近邻效应往往与层间电荷转移协同作用, 成为在异质结材料体系构筑新型磁电物态的手段, 可在非磁或弱磁层中诱导出超越母体的高温铁磁序^[61]. 例如, 在 $\text{CaRuO}_3/\text{La}_{0.67}\text{Sr}_{0.33}\text{MnO}_3$ 超晶格中, Ru-Mn 界面反铁磁耦合诱导 CaRuO_3 层在室温下呈现铁磁序, 并伴随反常霍尔电导率的数量级增强^[8]. 在 $\text{LaNiO}_3/\text{LaMnO}_3$ 体系中, 磁近邻效应与层间电荷转移协同作用, 形成了具有不同居里温度的层状铁磁结构, 其中 LaNiO_3 内层铁磁序可延伸至距界面 12 个单胞处^[62].

3 带宽占据控制的物态调控策略

3.1 界面应力

关联氧化物材料体系中晶格自由度与轨道自由度之间存在强烈的关联耦合作用, 这使得界面应力成为关联氧化物电输运特性和磁学性质调控的重要手段. 界面应力调控关联氧化物电输运特性和磁学性质的本质是通过调控晶体结构的键长与键角, 直接调制其带宽 W , 从而改变 U/W 比值, 实

现对电输运特性和磁学性质的有效调控. 当关联氧化物薄膜在单晶衬底上外延生长时, 由于薄膜与衬底间晶格参数的失配, 会产生面内拉伸应力或压缩应力, 显著地调控氧化物材料的键角和键长及轨道杂化程度. 根据这一特性, 研究者们已经在 VO_2 , V_2O_3 , ReNiO_3 等材料体系中实现了电子相变特性的调控^[63–67]. 例如, 沿 VO_2 金红石的 c 轴施加双轴压缩应力, 会加剧 V-3d 和 O-2p 的轨道重叠程度, 进而降低 VO_2 的相变温度^[63]. 传统的外延应变调控受限于固定晶格失配的衬底, 难以实现多样化的晶格构型和 T_{MIT} 的动态调制. 在两层界面中间插入缓冲层的策略^[63] 也被用于精准调控 VO_2 薄膜的 T_{MIT} . 如图 6(a) 所示, Lee 等^[64] 构建了 $\text{TiO}_2/\text{VO}_2/\text{TiO}_2$ 的三层结构, 实现了 T_{MIT} 的连续调控, 中间 VO_2 外延薄膜中的应变程度由顶层和底层 TiO_2 层的相对厚度比 ($t_{\text{VO}_2}/t_{\text{TiO}_2}$) 决定, 改变应变分配层 TiO_2 的厚度, VO_2 层的 T_{MIT} 可系统性地从 292 K 调控至 312 K, 同时保持优异相变尖锐度. 与之类似, Aetukuri 等^[65] 构建 $\text{VO}_2/\text{RuO}_2/\text{TiO}_2$ 异质结, 通过改变中间缓冲层 RuO_2 的厚度, 调控 VO_2 材料金属相的电子占据, 实现对 VO_2 薄膜 T_{MIT} 的连续调控, 如图 6(b) 和图 6(c) 所示. 在另一典型钒氧化物 V_2O_3 中, 其 c/a 轴比对晶格畸变的响应同样决定了金属-绝缘体相变的稳定性. 基于此, Sakai 等^[66] 通过脉冲激光沉积法在 c 面 (0001) 和 r 面 ($1\bar{1}02$) 蓝宝石 (Al_2O_3) 衬底上制备了 V_2O_3 外延薄膜, 通过改变沉积条件实现了对薄膜应变的调控. 研究发现, c 面衬底上 V_2O_3 薄膜的 c/a 比可在 2.79 至 2.88 的宽温域内连续变化, 如图 6(d) 所示. 这一范围几乎跨越了体材料中顺磁金属相 ($c/a \geq 2.815$) 和顺磁绝缘相 ($c/a \leq 2.79$) 的相边界, 且 c/a 比较小的薄膜呈现较高的金属-绝缘体转变温度或完全绝缘性, 而 c/a 比较大的薄膜则在整个温区保持金属态.

在 ReNiO_3 体系中, 界面应力通过调控 NiO_6 八面体结构的扭曲程度, 影响 Ni-O-Ni 键角和容忍因子 (t) 以及 O-2p 轨道与 Ni-3d 轨道间的重叠程度, 从而操控 ReNiO_3 电子轨道构型的相对稳定性. 如图 6(e) 和图 6(f) 所示, Liu 等^[67] 通过选取一系列不同晶格常数的衬底, 系统地研究了外延应变对 NdNiO_3 超薄膜电子相和磁相的调控作用, 实现了对 NdNiO_3 薄膜晶格失配度 ε 在 -2.9% 至 +4.0% 范围内的连续调控. 在拉伸应变区 ($\varepsilon > 0$), 随着 ε

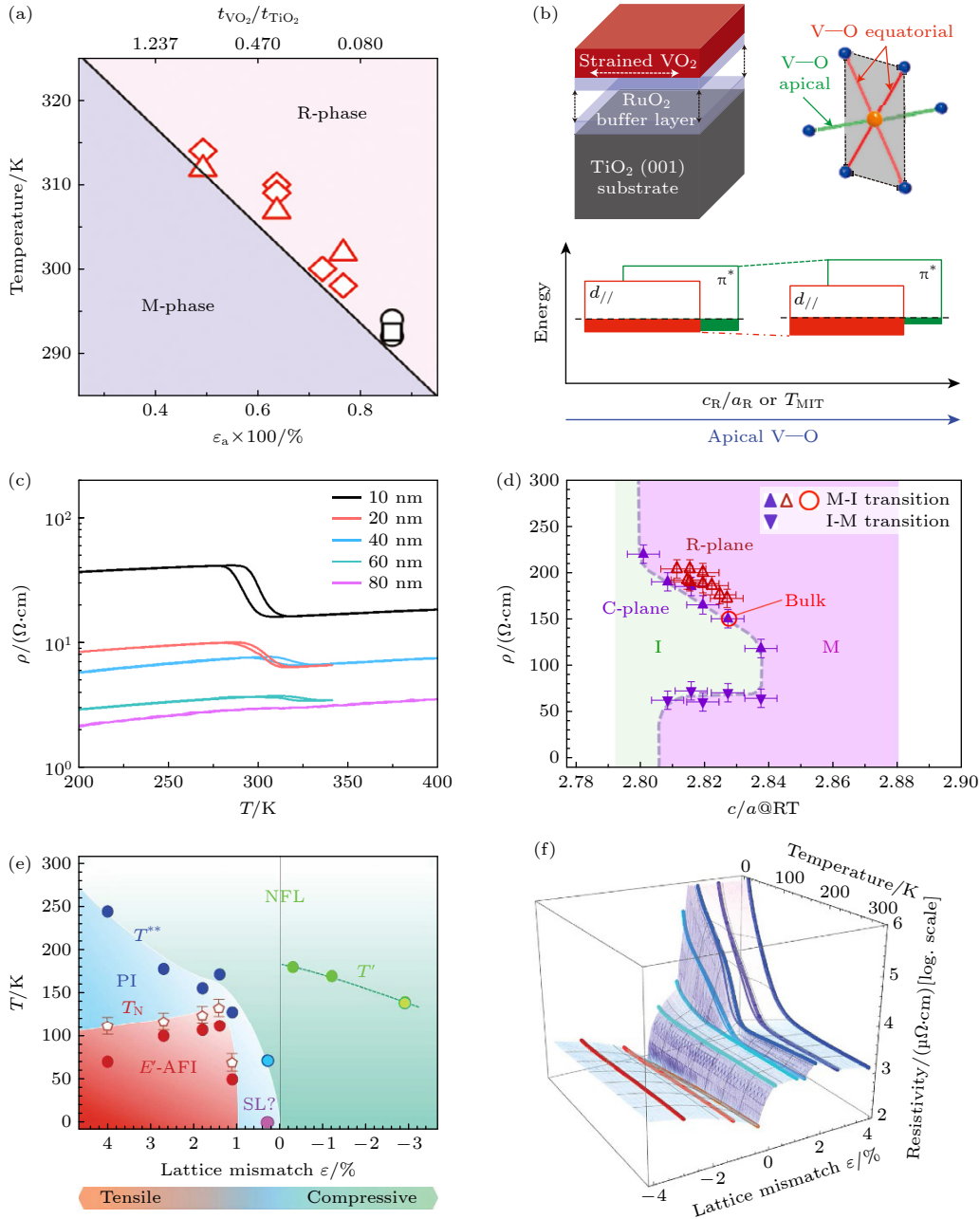


图6 界面应力调控强关联氧化物的电子相变特性 (a) $t_{\text{VO}_2}/t_{\text{TiO}_2}$ 相关的 VO_2 温度-应变相图^[64]; (b) 界面应力下 VO_2 的能带变化示意图^[65]; (c) 不同应力状态下 VO_2 的电输运行为^[63]; (d) V_2O_3 薄膜和块体的 M-I 与 I-M 转变温度随室温 c/a 比的变化^[66]; (e) 钕镍氧 (NdNiO_3) 晶格失配的温度相图^[67]; (f) 电阻率随温度变化与外延异质结构晶格失配的关系^[67]

Fig. 6. Tuning electronic phase transitions in correlated oxides via interfacial strain: (a) Thickness ratio ($t_{\text{VO}_2}/t_{\text{TiO}_2}$) dependent temperature-strain phase diagram of VO_2 ^[64]; (b) schematic illustration of band structure modification in VO_2 induced by interfacial strain^[65]; (c) electrical transport behavior of VO_2 under various strain states^[63]; (d) evolution of M-I and I-M transition temperatures with room temperature c/a ratio in V_2O_3 thin films and bulk^[66]; (e) mapping the temperature phase diagram of NdNiO_3 across varying lattice mismatch^[67]; (f) evolution of resistivity with temperature across varied epitaxial lattice mismatches^[67].

增大, 绝缘基态逐渐形成; 而在压缩应变区 ($\epsilon < 0$), 则出现一种奇异的非费米液体金属相, 并在整个温区稳定存在. 值得注意的是, 在 $\epsilon \approx 0$ 附近, 材料典型的一级相变消失, 说明材料内部的电子和磁有序被扰乱, 导致其本身的相变特性被抑制或改变. 除此之外, 面内拉伸应力可以诱导 LaCoO_3 发生自

旋态转变, 进而促进高自旋态 Co^{3+} 的形成, 促使 LaCoO_3 材料在约 80 K 处发生体相材料中不存在的铁磁-顺磁转变, 其有拉应力诱导的新奇铁磁绝缘态在低功耗自旋电子学领域中展现出可观的应用潜力. 综上所述, 界面应力通过调制关联氧化物晶格畸变、带宽和轨道杂化, 实现了对关联氧化物

电输运特性和磁学性质的有效调控, 展现了带宽控制在物态调控领域中的普适性和关键作用.

3.2 高压

在强关联氧化物材料体系中, 高压作为一种无扰动或非掺杂的物理调控手段, 能够在不可入化学无序的前提下直接压缩晶格、改变电子波函数重叠积分, 但不改变体系的化学计量比和载流子浓度, 从而精确调控关联氧化物的带宽 W 和电子关联强度 U , 是研究关联物理本征行为的重要工具^[68–70]. 此外, 高压还能够诱导配位数的增加和晶体结构的演化, 为探索新奇量子态提供了可能. 根据这一特性, 研究者们已经在 VO_2 、 V_2O_3 及 ReNiO_3 等材料体系中实现了多态结构演化和磁电相变^[71]. Xie 等^[72]通过金刚石对顶砧结合同步辐射 X 射线衍射和第一性原理计算, 系统地研究了 VO_2 在高压下的结构演化, 如图 7(a) 和图 7(b) 所示. 在常压条件下, VO_2 具有金红石结构, V 原子位于氧八

面体中心, 配位数为 6(CN6). 随着压力的增加, VO_2 经历了一系列配位数逐渐增加的相变: 首先在约 29 GPa 转变为 7 配位的正交相 (CN7, 空间群 $Pmn2_1$); 随后在约 70 GPa 转变为 8 配位的 $Pnma$ 相 (CN8); 接着在约 100 GPa 转变为 9 配位的 $P\bar{6}2m$ 相 (CN9); 理论预测在约 350 GPa 将转变为 10 配位的 $I4/mmm$ 相 (CN10). 在 VO_2 中, 高压诱导的配位数增加遵循着从角共享向边共享乃至面共享演化的有序模式, 体系逐渐从离子性向共价性转变.

与 VO_2 类似, 另一典型钒氧化物 V_2O_3 在高压下同样展现出丰富的结构演化行为, 但其物理内涵却有所不同, V_2O_3 作为莫特物理的经典模型体系, 在 150 K 发生从低温反铁磁绝缘体到高温顺磁金属态的一级相变, 同时伴随结构相变和磁相变, 其高压行为更侧重于电子关联与阳离子-阳离子成键之间的竞争与协同. 如图 7(c) 所示, Valmianski 等^[73]系统地研究了不同取向 (r 面、 a 面、 m 面)

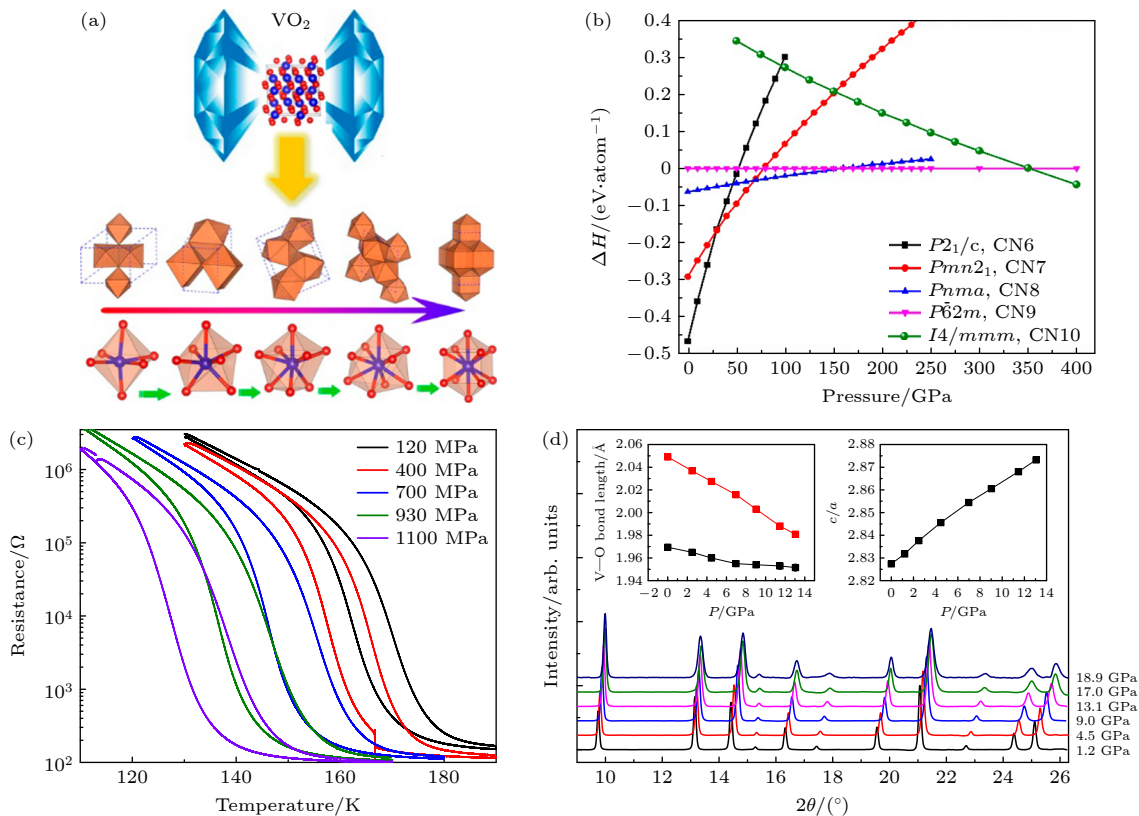


图 7 高压调控强关联氧化物的电子相变特性 (a) 高压环境下 VO_2 晶体结构变化示意图^[72]; (b) 不同钒基氧化物结构随压力变化的焓值^[72]; (c) 不同压力下 V_2O_3 生长在 r 面蓝宝石上的电子输运特性^[73]; (d) 不同压力下 V_2O_3 的同步辐射 X 射线衍射对比图^[74]

Fig. 7. Tuning electronic phase transitions in correlated oxides via high pressure: (a) Schematic illustration of the structural evolution of VO_2 under high pressure^[72]; (b) enthalpies of different vanadium oxide structures under high pressure^[72]; (c) electronic transport properties of V_2O_3 grown on r -plane sapphire under different pressures^[73]; (d) comparison of synchrotron X-ray diffraction patterns of V_2O_3 under different pressures^[74].

V_2O_3 薄膜在静水压力下的 MIT 行为. 以 r 面取向的 V_2O_3 薄膜为例, 其 MIT 温度随压力增加呈现单调降低的趋势, 这表明 V_2O_3 薄膜的 MIT 对压力响应敏感, 但其行为受衬底限制和微观孔隙等因素调制. 为深入理解 V_2O_3 晶格本身在高压下的本征响应, Bai 等^[74] 利用金刚石对顶砧结合同步辐射 X 射线衍射, 系统研究了 V_2O_3 在高压下的结构演化. 在 0—18.9 GPa 压力范围内, V_2O_3 始终保持刚玉结构, c/a 比值随压力增加而单调增大, 如图 7(d) 所示. 进一步分析表明, V—O 键长的两组距离差异随压力升高而迅速减小, 意味着 V^{3+} 离子逐渐向 VO_6 八面体中心移动, 三角扭曲程度减弱. 这一结构演化将削弱电子关联能 U 并拓宽带宽 W , 从而有效降低 U/W 比值, 与 MIT 逐渐消失的行为高度一致. 上述研究表明, 高压通过调制晶格畸变和电子关联, 在钒氧化物体系中实现了丰富的相变调控. 值得注意的是, 研究者利用高压的调控手段在关联氧化物材料体系中发现了丰富的非常规磁电态, 拓宽关联氧化物电输运特性和磁学性质的设计空间.

值得注意的是, 高压在镍基氧化物高温超导研究中扮演着不可或缺的角色: 既是发现超导电性的关键“开关”, 也是调控和优化超导转变温度的核心手段. 2019 年, 斯坦福大学 Hwang 团队^[75] 率先基于 CaH_2 拓扑化学还原的方法在 $Nd_{0.8}Sr_{0.2}NiO_2$ 薄膜中观测到 9—15 K 的超导转变, 开启了镍基氧化物非常规超导电性研究热潮的序幕. 2023 年, 中山大学王猛团队^[76] 首次观测到 14 GPa 的压力下 $La_3Ni_2O_7$ 材料在 80 K 处发生的超导转变, 这一镍氧化物高温超导现象相继在 $La_4Ni_3O_{10}$, $Pr_4Ni_3O_{10}$, $La_2SmNi_2O_7$, $La_2PrNi_2O_7$ 等体系中发现^[77–81]. 近期, 南方科技大学薛其坤-陈卓昱团队^[82,83] 通过强氧化原子逐层外延技术, 相继在 $La_{2.85}Pr_{0.15}Ni_2O_7$ 和 $(La, Pr)_3Ni_2O_7$ 外延薄膜材料体系中发现超导转变温度约为 45 K 和 63 K 的常压镍基超导电性. 以上结果证明: 高压通过抑制自旋/电荷密度波等竞争序, 诱导非常规的镍基高温超导电性, 并通过与化学掺杂的协同作用提升镍氧化物的超导转变温度.

除上述讨论的典型带宽控制的物态调控策略, 在强关联氧化物异质结中, 维度控制是实现物态设计与功能调控的另一有效策略^[84]. 通过原子级精确构筑超晶格结构, 可在空间上约束电子态密度,

并借助界面耦合诱导出母体材料所不具备的磁电响应. 在维度控制方面, $LaNiO_3/CaTiO_3$ 超晶格的研究表明, 通过调节 $CaTiO_3$ 间隔层厚度, 可诱导 $LaNiO_3$ 亚层中氧八面体旋转模式从体 $a^-a^-a^-$ 转变为非平衡的 $a^-a^-c^+$ 模式. 该转变显著增强了 Ni-O 杂化, 使厚度仅 2 个单胞的 $LaNiO_3$ 层在 100 K 以上仍保持金属导电性, 同时实现了高达 35% 的轨道极化, 克服了超薄极限下金属性丧失与轨道简并的关键障碍^[85].

4 构建关联氧化物的热力学亚稳态

通过构建关联氧化物的热力学亚稳态, 可以突破热力学平衡相图, 对其能带结构和磁结构的固有约束, 拓展其电输运特性和磁学性质的设计空间, 为进一步探索关联氧化物材料体系中的新物态提供了可行的途径. 构建关联氧化物的亚稳态, 为研究材料体系中的新物态和新物理引入了非平衡态这一全新的调控自由度, 突破了传统材料的研究范式, 在关联氧化物物态调控中展现出可观潜力. 与传统平衡态材料相比, 亚稳相具有更高的吉布斯自由能, 这使其对外界刺激 (如温度、压力、电场、光场等) 表现出更为敏感响应特性. 在强关联氧化物中, 亚稳相往往伴随着晶格畸变、八面体倾斜或配位多面体重构等结构特征, 这些结构特征直接调制带宽 W 和电荷转移能 Δ , 从而改变 U/W 比值, 实现对金属-绝缘体转变的调控.

上述亚稳相调控机制在典型莫特材料 V_2O_3 中得到了充分体现. 如图 8(a) 所示, Amano 等^[86] 通过构建 V_2O_3 的温度-压力相图, 揭示了顺磁绝缘体、顺磁金属和反铁磁绝缘体三相之间的转变路径, 其中等对称性顺磁绝缘体到顺磁金属转变仅伴随体积变化, 而对称性破缺的反铁磁绝缘体到顺磁金属转变同时涉及结构相变和磁相变. 然而, 上述热力学的宏观相图难以清晰地描述关联氧化物电子体系中自由度耦合的情况. 在金属-绝缘体转变附近, 电子与晶格畸变的竞争往往导致体系自发形成纳米尺度的相分离. McLeod 等^[87] 借助低温近场红外显微镜, 直接观测到 V_2O_3 薄膜金属-绝缘体转变附近的纳米尺度的相共存, 并通过绘制相图, 更直观地证实了 V_2O_3 薄膜中电子转变与结构转变的解耦, 如图 8(b) 所示. 然而, 如何将这种解耦从特定温区拓展到全温区, 并实现可逆的、低功耗的

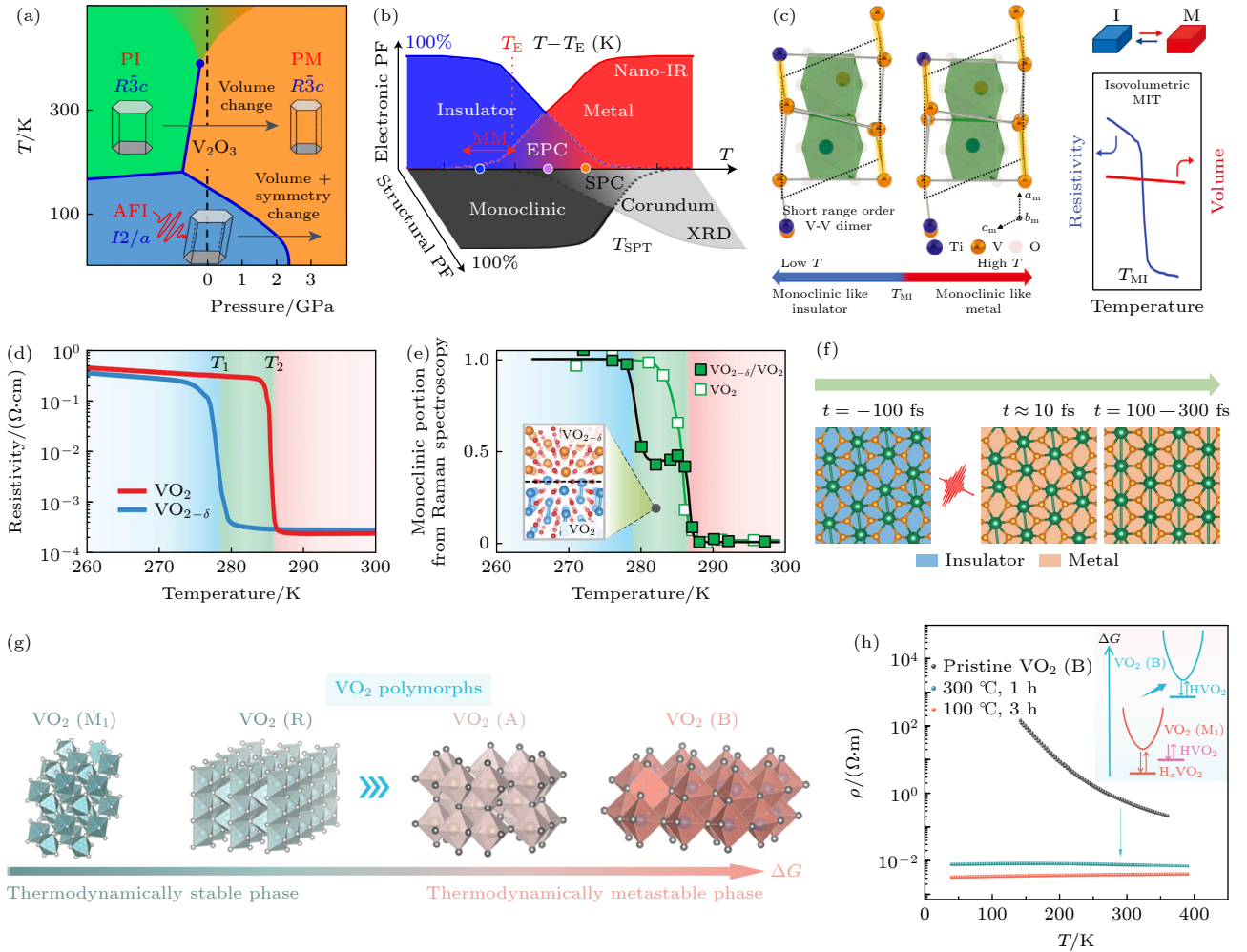


图 8 亚稳相在强关联氧化物中的设计 (a) V_2O_3 的热力学平衡相图^[86]; (b) 电子相分数和结构相分数的温度依赖性相图^[87]; (c) Ti 掺杂的 VO_2 金属-绝缘体转变示意图^[88]; (d) 在 TiO_2 (001) 衬底上生长的 VO_2 薄膜和 $VO_{2-\sigma}$ 薄膜的电输运特性^[89]; (e) VO_2 和 $VO_{2-\sigma}/VO_2$ 异质结中的单斜相含量变化曲线^[89]; (f) 单斜相 VO_2 中光诱导的电子及结构动态变化示意图^[90]; (g) VO_2 热力学平衡态和亚稳态的晶体结构示意图^[15]; (h) 不同氢化条件下 VO_2 (B) 相的电子输运特性^[15]

Fig. 8. Design of metastable phases in strongly correlated oxides: (a) Thermodynamic equilibrium phase diagram of V_2O_3 ^[86]; (b) temperature-dependent phase diagram of electronic and structural phase fractions^[87]; (c) schematic illustration of the metal-insulator transition in Ti-doped VO_2 ^[88]; (d) electronic transport properties of VO_2 and $VO_{2-\sigma}$ thin films grown on TiO_2 (001) substrate^[89]; (e) evolution of monoclinic phase fraction in VO_2 films and $VO_{2-\sigma}/VO_2$ heterostructures^[89]; (f) schematic illustration of photo-induced electronic and structural dynamics in monoclinic VO_2 ^[90]; (g) schematic illustration of the crystal structures of thermodynamic equilibrium and metastable states in VO_2 ^[15]; (h) electronic transport properties of the VO_2 (B) phase under different hydrogenation conditions^[15].

相变, 是关联电子器件走向应用的关键. Park 等^[88]通过在 VO_2 晶格中引入 Ti^{4+} 掺杂, 巧妙地利用原子尺度的局域畸变稳定了 V-V 二聚体, 使得金属相与绝缘相均可在单斜相的结构框架下共存, 如图 8(c) 所示. 除化学掺杂外, 异质结的构建为稳定非平衡态电子相提供了有效的途径. Lee 等^[89]通过构建 $VO_{2-\sigma}/VO_2$ 异质结的方式, 利用界面间的相互作用实现了同一结构下的金属-绝缘体转变, 如图 8(d) 所示. 在 279 至 287 K 的中间温区, 上层的 $VO_{2-\sigma}$ 表现为金属相, 下层的 VO_2 表现为绝缘

M1 相, 但整层结构的电输运行为表现为金属相, 表明下层的 VO_2 被诱导成为金属相. DFT 计算表明, 金红石相和单斜相之间的功函数差异导致空穴掺杂进入单斜区, 显著地抑制了电子关联, 同时界面之间的界面能有助于稳定非平衡态的单斜金属相. Xu 等^[90]利用超快光激发技术, 揭示了光激发下单斜 M1 相 VO_2 的超快结构相变以及金属-绝缘体转变时伴随的电子转变和结构转变的解耦. 如图 8(f) 所示, 从 -100—10 fs, 电子输运行为由绝缘体变为金属, 但 V-V 链之间的扭曲并未恢复, 在

100—300 fs 后, 扭曲的 V-V 链变直并保持金属行为, 这表明结构相变滞后于电子相变, 为相变的解耦提供了关键性的证据. 上述研究表明, 无论是通过掺杂引入的原子尺度局域畸变, 通过构建异质结实现的电荷转移, 还是借助超快光激发产生的非平衡态, 均可触发关联氧化物中电子相变与结构相变的解耦. 这一解耦现象为厘清莫特物理与派尔森相变机制在金属-绝缘体转变中的竞争与协同关系提供了有效手段, 通过分离电子关联与晶格畸变的贡献, 得以更清晰地辨识两者在相变中的主导作用. 另一方面, 上述策略在实现电子相变的同时, 往往能够保持晶体结构在相变前后的整体一致性, 这显著地降低了相变过程中因体积变化和晶格重构带来的影响, 从而有效地提升了器件的开关重复性与循环耐久性. 因此, 亚稳相的调控不仅为理解关联氧化物的基本物理提供了新的实验范式, 也为开发高速度、低功耗、长寿命的关联电子器件奠定了材料基础.

为了展现亚稳态相较于平衡态的独特优势, 本课题组^[15]在 SrTiO₃ (001) 衬底上成功诱导出亚稳相 VO₂ (B), 并通过氢溢出法对氢化后的 VO₂ (M1) 和 VO₂ (B) 相进行比较. 结果表明亚稳相材料表现出优异的化学稳定性, 并在富氧气氛下 200 °C 退火 1 h, 即可克服氢扩散势垒, 实现完全脱氢过程, VO₂ (B) 的半导体输运特性可逆恢复, 如图 8(g) 和图 8(h) 所示. 这种稳定且可逆的氢化相为质子器件的应用提供了新的材料平台, 同时也印证了亚稳相材料在突破平衡态约束、实现新奇电子物态方面的独特优势. 上述研究不仅深化了对莫特物理本质的理解, 更为关联电子器件的设计与应用提供了新的材料平台. VO₂ (B) 中稳定又可逆的氢化相为质子器件应用开辟了新途径, 展现出亚稳相调控从基础物理走向器件应用的广阔前景.

5 多学科交叉器件应用

基于关联氧化物电子相变特性的多场调控研究, 不仅深化了对能带占据调控物态的本质理解, 更为新型功能器件的设计与应用提供了丰富的材料基础和物理机制. 通过氢化、氧空位、界面应力、高压及化学掺杂等手段, 研究者们已在神经形态计算、阈值开关、神经元等领域取得了重要进展, 展现出关联氧化物在下一代电子器件中的巨大潜力.

利用氢溢出法在室温下将质子引入 SmNiO₃ 薄膜, 构建了具有非对称结构的 Pt/H-SNO/SNO/Au 两端器件, 如图 9(a)—(c) 所示^[91]. 在外加电场作用下, 质子沿电场方向在晶格中迁移, 通过电子转移改变局域电子态, 从而实现电阻态的可逆切换. 该器件能够很好地模拟生物突触的信息处理与记忆动态过程, 通过连续施加正负脉冲成功模拟了生物突触行为, 并进一步展示了具有分支结构的多电导状态, 为构建基于数据分类的联想学习硬件系统开辟了新途径. 采用固态质子电解质多孔二氧化硅构建的三端器件, 在 VO₂ 沟道中实现栅压诱导的可逆绝缘体-金属转变, 如图 9(d) 所示^[92]. 在低栅压范围内, 器件呈现可逆的绝缘体-金属转变; 当栅压进一步增大时, 器件展现出两步相变行为, 首先从绝缘态转变为金属态, 随后在持续正栅压下金属态重新转变为绝缘态, 电导率降低达两个数量级, 并通过原位 X 射线微衍射进一步揭示了质子化诱导的巨大面外晶格膨胀, 表明质子嵌入伴随的晶格膨胀是电子相变的结构响应, 为开发新型三端化学器件提供了新思路.

通过在 VO₂ 中引入等价 Ti 掺杂, 构建了零应变金属-绝缘体转变器件, 显著提升开关性能, 如图 9(e) 和图 9(f) 所示. 该类器件的有效孵育时间比未掺杂 VO₂ 器件短两个数量级, 表明零应变相变通过降低畴壁成核势垒显著地加速了电压触发的相变动力学^[88]. 通过在 TiO₂ 衬底上引入岛状铂, 可在 VO₂ 外延薄膜中实现应变梯度工程, 显著地加速阈值开关的开关速度^[93]. 如图 9(g) 和图 9(h) 所示, 岛状铂破坏 VO₂/TiO₂ 界面的共晶格性, 导致应变逐渐弛豫. 在施加电压脉冲后, 恒定应变 VO₂ 器件的电流在有限延迟后突然跳变, 孵育时间约为 12.7 μs; 而应变梯度 VO₂ 器件则表现出即时的电流跳变, 无明显时间延迟, 孵育时间降低至 0.7 μs, 加速约 18 倍. 基于负微分电阻特性的自振荡电路进一步证实了应变梯度器件的优越性, 其振荡频率范围远宽于恒定应变器件, 频率可调性提升 153%, 为开发超快、低功耗神经元器件提供了新途径. 基于关联氧化物电子相变特性的多场调控研究, 已在神经形态计算、固态质子门控晶体管、零应变相变器件及应变梯度阈值开关等领域取得了重要进展. 通过质子和莫特转变的耦合实现了突触行为的模拟与树状记忆状态的构建, 为神经形态计算提供了硬件基础; 通过岛状铂诱导应变梯

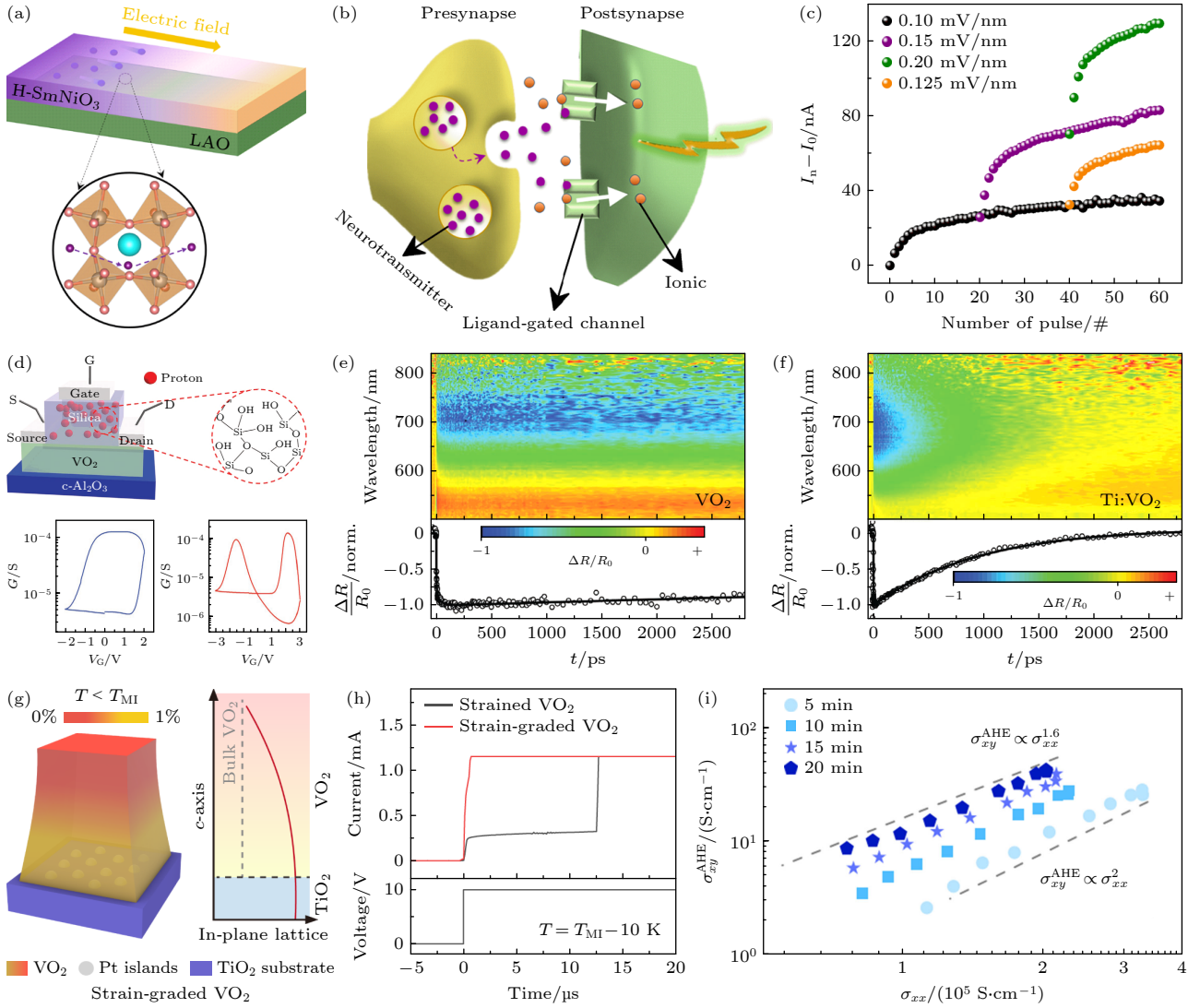


图9 多场调控下的器件构型及应用 (a) SmNiO_3 薄膜中电场控制下的质子迁移示意图^[91]; (b) 生物突触示意图^[91]; (c) 具有分支结构的多重导电态的测试图^[91]; (d) VO_2 相关的三端器件原理图^[92]; (e) VO_2 薄膜中 XLD 随温度变化分布图^[88]; (f) Ti 掺杂的 VO_2 薄膜中 XLD 随温度变化分布图^[88]; (g) 应变梯度下 VO_2 薄膜的结构示意图^[93]; (h) 应变梯度 VO_2 器件与均匀应变 VO_2 器件在电压脉冲下的电流响应对比图^[93]; (i) 氢化 PdCoO_2 的反常霍尔效应^[94]

Fig. 9. Multi-field controlled device configurations and applications: (a) Schematic illustration of proton migration under electric field control in SmNiO_3 films^[91]; (b) schematic illustration of a biological synapse^[91]; (c) measurement of multiple conductive states with branched structures^[91]; (d) schematic diagram of a VO_2 -based three-terminal device^[92]; (e) XLD mapping of VO_2 films as a function of temperature^[88]; (f) XLD mapping of Ti-doped VO_2 films as a function of temperature^[88]; (g) schematic illustration of the structure of VO_2 films under a strain gradient^[93]; (h) comparison of current response under voltage pulses between strain-gradient VO_2 devices and uniformly strained VO_2 devices^[93]; (i) the anomalous Hall effect for hydrogenated PdCoO_2 ^[94].

度, 将阈值开关的孵育时间降低两个数量级, 并大幅扩展了振荡频率的可调范围. 这些研究不仅深化了对关联氧化物中离子-电子-晶格耦合机制的理解, 也为开发新型信息器件奠定了材料和物理基础. Tian 等^[94] 利用氢离子掺杂的位点选择特性在 PdCoO_2 中实现了高温铁磁性, 同时保持母相材料的优异金属特性, 成为构筑高集成自旋电子器件的理想候选材料, 如图 9(i) 所示.

6 结 语

综上所述, 基于能带占据和带宽控制的物态调控方法协同操控关联氧化物中离子-电子-晶格间的关联耦合作用, 为精准设计其电输运特性和磁性性质提供了广阔的空间, 在关联氧化物材料体系中实现了多态结构演化和磁电转变, 并孕育出丰富的新物态、新物理和多学科交叉的器件应用. 基于先进

的谱学和电镜技术, 跨尺度精准表征关联氧化物的原子尺度晶格结构、实空间电荷序与自旋磁序及动量空间能带结构, 有助于构建微观自由度关联耦合作用与宏观磁电物态调控的定量关联, 厘清磁电物态调控的本征物理机制, 为探索与创制新奇物态奠定材料和物理基础. 然而, 关联氧化物体系中电子强关联效应与电子-晶格相互作用间复杂的耦合关系使其温致金属-绝缘体相变、电子反掺杂物理及离子掺杂诱导的磁电耦合效应的物理图像仍处于争议之中, 未来有待借助理论计算和先进的谱学仪器表征进一步厘清. 利用能带占据和带宽控制的物态调控方法及引入非平衡态调控, 有望在关联氧化物材料体系中创制出更为丰富的磁电物态及衍生出新奇的物理功能特性, 为研制高性能磁电功能器件奠定基础.

参考文献

- [1] Hu Y, Lane C, Chen X, Peng S, Sun Z, Hashimoto M, Lu D, Wu T, Markiewicz R S, Chen X, Bansil A, Wilson S D, He J *2025 Phys. Rev. Lett.* **135** 196403
- [2] Puphal P, Schäfer T, Keimer B, Hepting M *2026 Nat. Rev. Phys.* **8** 70
- [3] Nukala P, Ahmadi M, Wei Y, de Graaf S, Stylianidis E, Chakraborty T, Matzen S, Zandbergen H W, Björling A, Mannix D, Carbone D, Kooi B, Noheda B *2021 Science* **372** 630
- [4] Zhang J, Shen S, Puggioni D, Wang M, Sha H, Xu X, Lyu Y, Peng H, Xing W, Walters L N, Liu L, Wang Y, Hou D, Xi C, Pi L, Ishizuka H, Kotani Y, Kimata M, Nojiri H, Nakamura T, Liang T, Yi D, Nan T, Zang J, Sheng Z, He Q, Zhou S, Nagaosa N, Nan C W, Tokura Y, Yu R, Rondinelli J M, Yu P *2024 Nat. Mater.* **23** 912
- [5] Hunnestad K A, Das H, Hatzoglou C, Holtz M, Brooks C M, van Helvoort A T J, Muller D A, Schlom D G, Mundy J A, Meier D *2024 Nat. Commun.* **15** 5400
- [6] Shi W, Zheng J, Li Z, Wang M, Zhu Z, Zhang J, Zhang H, Chen Y, Hu F, Shen B, Chen Y, Sun J *2024 Small* **20** 2308172
- [7] Zheng J, Shi W, Li Z, Zhang J, Yang C Y, Zhu Z, Wang M, Zhang J, Han F, Zhang H, Chen Y, Hu F, Shen B, Chen Y, Sun J *2024 ACS Nano* **18** 9232
- [8] Zheng J, Zhang J, Cheng S, Shi W, Wang M, Li Z, Chen Y, Hu F, Shen B, Chen Y, Zhu T, Sun J *2024 ACS Nano* **18** 32625
- [9] Suresh S, Sadhu S P P, Mishra V, Paulus W, Ramachandra Rao M S *2024 J. Phys. Condens. Matter* **36** 425601
- [10] Ha M, Xiao Q, Qin Z, Qiu D, Shang L, Liu X, Yan P, Ma C, Liu D, Huang C, Chen Z, Wang H, Duan C K, Liao Z, Liu W T, Gao Y, Cao K, Du J, Cheng G *2025 Nat. Sci. Rev.* **12** nwaf156
- [11] Lei M Y A, Chen Z H, Wang H T, Fan Y, Guo N, Jiang T X, Cao Y W, Zhang T, Peng R, Xu H C *2025 Chin. Phys. Lett.* **42** 100710
- [12] Sanchez-Manzano D, Krieger G, Raji A, Geisler B, Sahib H, Humbert V, Jaffrès H, Santamaría J, Pentcheva R, Gloter A, Preziosi D, Villegas J E *2026 Nat. Mater.* **25** 49
- [13] Zhang Y, Qiu L, Chen J, Wu S, Wang H, Malik I A, Cai M, Wu M, Gao P, Hua C, Yu W, Xiao J, Jiang Y, Yu H, Shen K, Zhang J *2025 Nat. Mater.* **24** 69
- [14] Raji A, Gutiérrez-Llorente A, Zhang D, Li X, Bibes M, Iglesias L, Rueff J P, Gloter A *2024 Adv. Funct. Mater.* **34** 2409930
- [15] Zhou X, Jiao Y, Lu W, Guo J, Yao X, Ji J, Zhou G, Ji H, Yuan Z, Xu X *2025 Adv. Sci.* **12** 2414991
- [16] Park Y, Jang H Y, Lee T K, Kim T, Kim D, Kim D, Baik H, Choi J, Kwon T, Yoo S J, Back S, Lee K *2025 Nat. Commun.* **16** 579
- [17] Rath M, Mezhoud M, Upadhyay M, Portier X, Duprey S, Marie P, Cardin J, Labbé C, Gourbilleau F, Hurand S, Cheikh A, David A, Fouchet A, Prellier W, Lüders U *2026 Adv. Mater. Interfaces* **5** e01094
- [18] Watkins A K, Cheetham A K, Seshadri R *2026 Chem. Mater.* **38** 1551
- [19] Huang C, Tang Z, Dou Y, Sun L, Li Q, Huo L, Zhao H *2026 J. Energy Chem.* **113** 881
- [20] Peng C, Yu Z, Zhou F, Lin J, Xu A, Liu X, Zhao S, Li X *2026 J. Colloid Interface Sci.* **710** 139997
- [21] Afimchenko N A, Shubin A A, Zilberberg I L, Nemudry A P *2026 Solid State Ionics* **438** 117153
- [22] Endo T, Araki Y, Seki M, Tabata H, Tanaka M, Ohya S *2026 Appl. Phys. Lett.* **128** 022405
- [23] Fadla M A, Grüning M, Stella L *2025 Phys. Rev. Mater.* **9** 105002
- [24] Spurling R J, Sivak J T, Sinnott S B, Maria J P *2026 Scr. Mater.* **271** 117014
- [25] Murphy G L, Gilson S, Popa K, Prieur D, Schenk S M, Valu S O, Ramanantoanina H, Prüßmann T, Vitova T, Dardenne K, Rothe J, Colle J Y, Walter O, Huittinen N *2025 Commun. Chem.* **9** 50
- [26] Wei J, Ji H, Guo W, Nevidomskyy A H, Natelson D *2012 Nat. Nanotechnol.* **7** 357
- [27] Jeong J, Aetukuri N, Graf T, Schladt T D, Samant M G, Parkin S S P *2013 Science* **339** 1402
- [28] Yoon H, Choi M, Lim T W, Kwon H, Ihm K, Kim J K, Choi S Y, Son J *2016 Nat. Mater.* **15** 1113
- [29] Chen Y, Wang Z, Chen S, Ren H, Wang L, Zhang G, Lu Y, Jiang J, Zou C, Luo Y *2018 Nat. Commun.* **9** 818
- [30] Liu J, Yang C, Wu W, Gao L, Zhu M, Wang Y, Lyu X, Lu C, Lin T, Li M, Wang L, Liu P, Zhong W, Ji A, Zhang Q, Zhao J, Si L, Zhang C, Gu L, Yu P, Meng S, Cao Z, Lu N *2026 Small* **22** e10246
- [31] Zhou X, Yao X, Lu W, Guo J, Ji J, Lang L, Zhou G, Yao C, Qiao X, Ji H, Yuan Z, Xu X *2026 Adv. Sci.* **13** e10771
- [32] Gao L, Wang H, Meng F, Peng H, Lyu X, Zhu M, Wang Y, Lu C, Liu J, Lin T, Ji A, Zhang Q, Gu L, Yu P, Meng S, Cao Z, Lu N *2023 Adv. Mater.* **35** 2300617
- [33] Guasco L, Pons R, Cortie D, Bannenber L J, Wochner P, Goering E, Nagel P, Schuppler S, Hayashida S, Merkle R, Keimer B, Keller T, Benckiser E *2025 Adv. Funct. Mater.* **35** 2419253
- [34] Wei L, Jiang P, Chen P, Hong Y, Deng Z, Wang T, Xiao W, Wang L, Gan Y, Tian X, Zhong Z, Chen K, Liao Z *2025 Nano Lett.* **25** 10478
- [35] Wang M, Sui X, Wang Y, Juan Y H, Lyu Y, Peng H, Huang T, Shen S, Guo C, Zhang J, Li Z, Li H B, Lu N, N'Diaye A T, Arenholz E, Zhou S, He Q, Chu Y H, Duan W, Yu P *2019 Adv. Mater.* **31** 1900458
- [36] Wu M, Li Y, Luo H, Liao X, Liu W, Huang X, Shi J, Zhang K H L, Deng T, Du Y, Chen J, Fu D, Wang H Q, Kang J *2023 Phys. Rev. B* **107** 245128
- [37] Han H, Zhou H, Guillemard C, Valvidares M, Sharma A, Li Y, Sharma A K, Kostanovskiy I, Ernst A, Parkin S S P *2023 Adv. Mater.* **35** 2207246

- [38] Li Z, Shen S, Tian Z, Hwangbo K, Wang M, Wang Y, Bartram F M, He L, Lyu Y, Dong Y, Wan G, Li H, Lu N, Zang J, Zhou H, Arenholz E, He Q, Yang L, Luo W, Yu P 2020 *Nat. Commun.* **11** 184
- [39] Shibuya K, Kawasaki M, Tokura Y 2010 *Appl. Phys. Lett.* **96** 022102
- [40] Yajima T, Nishimura T, Toriumi A 2017 *Small* **13** 1603113
- [41] Lupi S, Baldassarre L, Mansart B, Perucchi A, Barinov A, Dudin P, Papalazarou E, Rodolakis F, Rueff J P, Itié J P, Ravy S, Nicoletti D, Postorino P, Hansmann P, Parragh N, Toschi A, Saha-Dasgupta T, Andersen O K, Sangiovanni G, Held K, Marsi M 2010 *Nat. Commun.* **1** 105
- [42] Yan F, Korostelev V, Cho E, Yang K, Wu J, Lu Q, Luo F, Ross C A, Klyukin K, Ning S 2024 *Adv. Funct. Mater.* **34** 2316608
- [43] Zhou X, Yao X, Qiao X, Ji J, Zhou G, Ji H, Xu X 2026 *Small* **22** e10736
- [44] Li B, Hu M, Ren H, Hu C, Li L, Zhang G, Jiang J, Zou C 2020 *J. Phys. Chem. Lett.* **11** 10045
- [45] Kotiuga M, Zhang Z, Li J, Rodolakis F, Zhou H, Sutarto R, He F, Wang Q, Sun Y, Wang Y, Aghamiri N A, Hancock S B, Rokhinson L P, Landau D P, Abate Y, Freeland J W, Comin R, Ramanathan S, Rabe K M 2019 *Proc. Natl. Acad. Sci. U. S. A.* **116** 21992
- [46] Li H B, Kobayashi S, Zhong C, Namba M, Cao Y, Kato D, Kotani Y, Lin Q, Wu M, Wang W H, Kobayashi M, Fujita K, Tassel C, Terashima T, Kuwabara A, Kobayashi Y, Takatsu H, Kageyama H 2021 *J. Am. Chem. Soc.* **143** 17517
- [47] Ohtomo A and Hwang H Y 2004 *Nature* **427** 423
- [48] Zhang H, Qiao W, Bai H, Wu N, Chen L, Meng F, Ma Y, Zhang J, Han F, Yang H, Zhang Q, Gu L, Liu B, Chen Y, Hu F, Han W, Zhu T, Shen B, Sun J, Zhao W 2025 *Adv. Funct. Mater.* **35** e06394
- [49] Hua X, Zeng Z, Meng F, Yao H, Huang Z, Long X, Li Z, Wang Y, Wang Z, Wu T, Weng Z, Wang Y, Liu Z, Xiang Z, Chen X 2024 *Nat. Phys.* **20** 957
- [50] Hua X, Meng F, Huang Z, Li Z, Wang S, Ge B, Xiang Z, Chen X 2022 *npj Quantum Mater.* **7** 97
- [51] Danz T, Domröse T, Ropers C 2021 *Science* **371** 371
- [52] Zhang H, Yun Y, Zhang X, Zhang H, Ma Y, Yan X, Wang F, Li G, Li R, Khan T, Chen Y, Liu W, Hu F, Liu B, Shen B, Han W, Sun J 2018 *Phys. Rev. Lett.* **121** 116803
- [53] Bange J P, Roddatis V, Schtüler L, Lyzwa F, Keuncke M, Lopatin S, Bruchmann-Bamberg V, Moshnyaga V 2022 *Adv. Mater. Interfaces* **9** 2201282
- [54] Smadici S, Abbamonte P, Bhattacharya A, Zhai X, Jiang B, Rusydi A, Eckstein J N, Bader S D, Zuo J M 2007 *Phys. Rev. Lett.* **99** 196404
- [55] Zhou G, Li Z, Dou J, Ji H, Kang P, Shen Y, Wang S and Xu X 2023 *RSC Adv.* **13** 10254
- [56] Zhou G, Ji H, Lin W, Zhang J, Bai Y, Chen J, Wu M and Xu X 2020 *Phys. Rev. B* **101** 024422
- [57] Liao Z, Skoropata E, Freeland J W, Guo E J, Desautels R, Gao X, Sohn C, Rastogi A, Ward T Z, Zou T, Charlton T, Fitzsimmons M R, Lee H N 2019 *Nat. Commun.* **10** 589
- [58] Phillips P J, Rui X, Georgescu A B, Disa A S, Longo P, Okunishi E, Walker F, Ahn C H, Ismail-Beigi S, Klie R F 2017 *Phys. Rev. B* **95** 205131
- [59] Chen H, Kumah D P, Disa A S, Walker F J, Ahn C H, Ismail-Beigi S 2013 *Phys. Rev. Lett.* **110** 186402
- [60] Zhou T, Gao F, Zhang Q, Chen Y, Hu X, He Y, Zhao Y, Li J, Li M, Qi S, Hu F, Sun J, Chen Y, Shen B 2025 *Nat. Commun.* **16** 3691
- [61] Han F, Zhang J, He Y, Li B, Feng X, Yang F, Zhao M, Song Z, Zhang H, Zhang J, Yang H, Wu H, Zhang K, Zhao W, Sun J, Zhang Y 2025 *Adv. Funct. Mater.* **35** 2504842
- [62] Wang M, Zhu T, Bai H, Yin Z, Xu H, Shi W, Li Z, Zheng J, Gan Y, Chen Y, Shen B, Chen Y, Zhang Q, Hu F, Sun J R 2024 *Nano Lett.* **24** 1122
- [63] Yao X, Ji J, Zhou X 2025 *J. Alloys Compd.* **1044** 184458
- [64] Lee S, Lee D K, Park Y, Sim H, Choi S Y, Son J 2025 *Adv. Funct. Mater.* **35** 2501282
- [65] Aetukuri N B, Gray A X, Drouard M, Cossale M, Gao L, Reid A H, Kukreja R, Ohldag H, Jenkins C A, Arenholz E, Roche K P, Dürr H A, Samant M G, Parkin S S P 2013 *Nat. Phys.* **9** 661
- [66] Sakai J, Limelette P, Funakubo H 2015 *Appl. Phys. Lett.* **107** 241901
- [67] Liu J, Kargarian M, Kareev M, Gray B, Ryan P J, Cruz A, Tahir N, Chuang Y D, Guo J, Rondinelli J M, Freeland J W, Fiete G A, Chakhalian J 2013 *Nat. Commun.* **4** 2714
- [68] Zou Y, Wang P, Li Y, Chen H, Zhou C, Irifune T 2025 *iScience* **28** 111905
- [69] Akaogi M, Ishii T, Yamaura K 2024 *Commun. Chem.* **7** 189
- [70] Chen J, He J, Zhang Y, Chariton S, Prakapenka V, Yamaura K, Lin J F, Goodenough J B, Zhou J S 2023 *Phys. Rev. B* **108** 134106
- [71] Chen J, Li Z, Dong H, Xu J, Wang V, Feng Z, Chen Z, Chen B, Chen N, Mao H K 2020 *Adv. Funct. Mater.* **30** 2000987
- [72] Xie S Y, Wang L, Liu F, Li X B, Bai L, Prakapenka V B, Cai Z, Mao H K, Zhang S, Liu H 2018 *J. Phys. Chem. Lett.* **9** 2388
- [73] Valmianski I, Ramirez J G, Urban C, Batlle X, Schuller I K 2017 *Phys. Rev. B* **95** 155132
- [74] Bai L, Li Q, Corr S A, Pravica M, Chen C, Zhao Y, Sinogeikin S V, Meng Y, Park C, Shen G 2015 *Phys. Rev. B* **92** 134106
- [75] Li D, Lee K, Wang B Y, Osada M, Crossley S, Lee H R, Cui Y, Hikita Y, Hwang H Y 2019 *Nature* **572** 624
- [76] Sun H, Huo M, Hu X, Li J, Liu Z, Han Y, Tang L, Mao Z, Yang P, Wang B, Cheng J, Yao D X, Zhang G M, Wang M 2023 *Nature* **621** 493
- [77] Zhu Y, Peng D, Zhang E, Pan B, Chen X, Chen L, Ren H, Liu F, Hao Y, Li N, Xing Z, Lan F, Han J, Wang J, Jia D, Wo H, Gu Y, Gu Y, Ji L, Wang W, Gou H, Shen Y, Ying T, Chen X, Yang W, Cao H, Zheng C, Zeng Q, Guo J G, Zhao J 2024 *Nature* **631** 531
- [78] Li Q, Zhang Y J, Xiang Z N, Zhang Y H, Zhu X Y, Wen H H 2024 *Chin. Phys. Lett.* **41** 017401
- [79] Zhang E, Peng D, Zhu Y, Chen L, Cui B, Wang X, Wang W, Zeng Q, Zhao J 2025 *Phys. Rev. X* **15** 021008
- [80] Li F, Xing Z, Peng D, Dou J, Guo N, Ma L, Zhang Y, Wang L, Luo J, Yang J, Zhang J, Chang T, Chen Y S, Cai W, Cheng J, Wang Y, Liu Y, Luo T, Hirao N, Matsuoka T, Kadobayashi H, Zeng Z, Zheng Q, Zhou R, Zeng Q, Tao X, Zhang J 2026 *Nature* **649** 871
- [81] Wang N, Wang G, Shen X, Hou J, Luo J, Ma X, Yang H, Shi L, Dou J, Feng J, Yang J, Shi Y, Ren Z, Ma H, Yang P, Liu Z, Liu Y, Zhang H, Dong X, Wang Y, Jiang K, Hu J, Nagasaki S, Kitagawa K, Calder S, Yan J, Sun J, Wang B, Zhou R, Uwatoko Y, Cheng J 2024 *Nature* **634** 579
- [82] Zhou G D, Lv W, Wang H, Nie Z H, Chen Y Q, Li Y Y, Huang H L, Chen W Q, Sun Y J, Xue Q K, Chen Z Y 2025 *Nature* **640** 8059
- [83] Zhou G D, Wang H, Huang H L, Chen Y Q, Peng F, Lv W, Nie Z H, Wang W, Jia J F, Xue Q K, Chen Z Y 2026 *Nat. Sci. Rev.* **13** nwag151
- [84] Chen Z, Xu X, Qiu X, Tu J, Xu Y, Li Y, Zhou Y, Zhou C, Guan Z, Tong W, Zhong N, Xiang P, Duan C, Chen B 2026 *Adv. Funct. Mater.* **36** e24217
- [85] Shi W, Zhang J, Yu B, Zheng J, Wang M, Li Z, Zheng J, Liu B, Chen Y, Hu F, Shen B, Chen Y, Sun J 2024 *Nat.*

Commun. **15** 9931

- [86] Amano T, Babich D, Mandal R, et al. 2024 *Nat. Phys.* **20** 1778
- [87] McLeod A S, van Heumen E, Ramirez J G, Wang S, Saerbeck T, Guenon S, Goldflam M, Anderegg L, Kelly P, Mueller A, Liu M K, Schuller I K, Basov D N 2017 *Nat. Phys.* **13** 80
- [88] Park Y, Sim H, Lee S, Park W W, Hwang J, Hur P, Lee Y, Lee D K, Song K, Lee J, Kwon O H, Choi S Y, Son J 2025 *Adv. Mater.* **37** 2413546
- [89] Lee D, Chung B, Shi Y, Kim G Y, Campbell N, Xue F, Song K, Choi S Y, Podkaminer J P, Kim T H, Ryan P J, Kim J W, Paudel T R, Kang J H, Spinuzzi J W, Tenne D A, Tsybal E Y, Rzechowski M S, Chen L Q, Lee J, Eom C B

2018 *Science* **362** 1037

- [90] Xu J, Chen D, Meng S 2022 *Sci. Adv.* **8** eadd2392
- [91] Deng X, Liu Y X, Yang Z Z, Zhao Y F, Xu Y T, Fu M Y, Shen Y, Qu K, Guan Z, Tong W Y, Zhang Y Y, Chen B B, Zhong N, Xiang P H, Duan C G 2024 *Sci. Adv.* **10** eadk9928
- [92] Jo M, Lee H J, Oh C, Yoon H, Jo J Y, Son J 2018 *Adv. Funct. Mater.* **28** 1802003
- [93] Cho U, Lee D K, Lee S, Son J 2026 *ACS Nano* **20** 556
- [94] Tian D, Zheng H, Huang Z, Wu S, Li P, Li C, Zhang J, Shu X, Zhou J, Liu Y, Gu Y, Wang M, Yi D, Nan T, Chen Z, He Q, Wu H, Zhou S, Luo W, Yu P 2025 *Phys. Rev. X* **15** 041030

REVIEW

Design and manipulation of electrical transport and magnetic properties in correlated oxides^{*}

ZHOU Xuanchi^{1)2)†} YAO Xiaohui¹⁾ QIAO Xiaomei¹⁾

1) (*Key Laboratory of Magnetic Molecules and Magnetic Information Materials of Ministry of Education & School of Materials Science and Engineering, Shanxi Normal University, Taiyuan 030031, China*)

2) (*Collaborative Innovation Center for Shanxi Advanced Permanent Magnetic Materials and Technology & Research Institute of Materials Science, Shanxi Normal University, Taiyuan 030031, China*)

(Received 4 March 2026; revised manuscript received 31 March 2026)

Abstract

The intricate coupling among multiple degrees of freedom in correlated oxides gives rise to exotic quantum states and rich functional properties distinct from those of conventional semiconductors, thereby promoting the development of novel magnetoelectric electronic devices. Establishing the intrinsic correlations across scales—among real-space charge order, spin magnetic order, momentum-space band structure, atomic-scale lattice configuration, and macroscopic physical properties—provides a viable physical foundation and research pathway for precisely tailoring the magnetoelectric transport properties of correlated oxides. This review systematically summarizes recent advances in the design and manipulation of electrical transport and magnetic properties in correlated oxides. It focuses on tuning strategies governed by band-filling and bandwidth control, and elucidates the critical role of emerging approaches such as nonequilibrium state manipulation in the exploration and creation of exotic quantum states. This review aims to expand the design paradigms and tunability of magnetoelectric transport in correlated oxide systems, thereby fostering diverse magnetoelectric states and device applications within the correlated oxide family.

Keywords: correlated oxides, electrical transport property, magnetic property, physical property regulation, correlated physics

DOI: 10.7498/aps.75.20260319

CSTR: 32037.14.aps.75.20260319

^{*} Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 52401240), the Fundamental Research Program of Shanxi Province, China (Grant No. 202403021212123), the Scientific and Technological Innovation Programs of Higher Education Institutions of Shanxi Province, China (Grant No. 2024L145).

[†] Corresponding author. E-mail: xuanchizhou@sxnu.edu.cn

关联氧化物电输运特性和磁学性质的设计与调控

周轩弛 姚晓辉 乔晓梅

Design and manipulation of electrical transport and magnetic properties in correlated oxides

ZHOU Xuanchi YAO Xiaohui QIAO Xiaomei

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 75, 150705 (2026) DOI: 10.7498/aps.75.20260319

CSTR: 32037.14.aps.75.20260319

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.7498/aps.75.20260319>

当期内容 View table of contents: <http://wulixb.iphy.ac.cn>

您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

关联氧化物异质结磁电输运性质的氢离子调控

Hydrogen ion regulation of magnetoelectric transport properties in correlated oxide heterojunctions

物理学报. 2025, 74(23): 237502 <https://doi.org/10.7498/aps.74.20251210>

强关联电子相变氧化物材料及多场调控

Research on the electronic phase transitions in strongly correlated oxides and multi-field regulation

物理学报. 2024, 73(11): 117102 <https://doi.org/10.7498/aps.73.20240289>

外场对拓扑相变氧化物薄膜物性的调控研究进展

Research progress of control of physical properties of topological phase change oxide films by external field

物理学报. 2023, 72(9): 096801 <https://doi.org/10.7498/aps.72.20222266>

二维铁磁材料 Mn_2AsSb 的本征半金属性及磁学性质

Intrinsic half-metallicity and magnetic properties of two-dimensional ferromagnetic material Mn_2AsSb

物理学报. 2026, 75(8): 096801 <https://doi.org/10.7498/aps.75.20251622>

钴氧化物中晶格与自旋的关联耦合效应研究

Strong spin-lattice entanglement in cobaltites

物理学报. 2023, 72(9): 097502 <https://doi.org/10.7498/aps.72.20230206>

TiO薄膜的制备及电输运性质

Preparation and electrical transport properties of TiO thin films

物理学报. 2023, 72(22): 227302 <https://doi.org/10.7498/aps.72.20231083>