

一维 MoI_3 原子链磁性隧道结的巨隧穿磁阻效应及局域自旋调控*

万倩 李燕[†]

(西安交通大学材料科学与工程学院, 金属材料强度国家重点实验室, 西安 710049)

探索高性能隧道势垒材料是推动磁性隧道结 (MTJs) 发展的关键科学问题之一。尽管二维范德华材料因其原子级平整的界面备受瞩目, 但一维 (1D) 磁性半导体则凭借其独特的量子限制效应和卓越的自旋可调控性, 正成为构建新型自旋电子器件的另一极具潜力的途径。本文提出了一种基于一维 MoI_3 原子链为隧道势垒的新型 MTJs 结构, 并采用基于第一性原理的量子输运模拟, 系统研究了其自旋相关的输运机制。计算结果表明: 在不同的散射区长度下, 该器件均能在低偏压范围内实现高达约 $10^7\%$ 的巨隧穿磁阻 (TMR) 比率, 并展现出完美的 100% 自旋注入效率。此外研究发现, 通过在特定原子位点 (如 AC6 位置) 局域操控自旋极化的翻转, 能够有效调控器件的自旋输运特性; 在此局域调控下, 器件在宽偏压范围内依然能保持超过 $10^3\%$ 的 TMR 比率。上述发现充分凸显了一维 MoI_3 基 MTJs 在非易失性存储领域的巨大应用前景, 为低维磁性自旋电子器件的设计与开发提供了重要的新思路。

关键词: 第一性原理计算; 一维 MoI_3 ; 磁性隧道结 (MTJs); 隧穿磁阻 (TMR); 自旋极化输运

PACS: 72.25.Dc, 73.63.Nm, 85.75.-d

*国家自然科学基金 (批准号: 12274335) 和陕西省自然科学基金 (批准号: 2025QCY-KXJ-147) 资助的课题。

同等贡献作者。

[†] 通讯作者。E-mail: liyuan0802@xjtu.edu.cn

第一作者。E-mail: wangqian@stu.xjtu.edu.cn

1 引言

自旋电子学利用电子的本征自旋属性及其电荷自由度,为突破传统信息技术在运算速度、功耗及集成密度方面的物理极限提供了关键途径^[1]. 因此,探索新型高性能磁性材料与器件架构始终是该领域的核心前沿^[2-5]. 磁性隧道结 (MTJs) 作为自旋电子器件的基础单元,在磁随机存储、自旋转移矩调控以及相关器件建模中具有重要意义^[6-8],其自旋极化输运行为高度依赖于隧道势垒层的物理特性,尤其是势垒厚度、界面结构及电子态匹配等因素,均会对自旋极化程度和隧穿磁阻响应产生显著影响^[9]. 长期以来,MTJs 主要采用氧化物绝缘层作为势垒,但在实际应用中仍面临铁磁与势垒界面质量难控、化学键合杂散场干扰隧穿磁阻 (TMR) 效应等严峻挑战^[10].

近年来,二维 (2D) 范德华材料的兴起为解决界面散射问题提供了新思路^[11,12]. 研究表明,利用单层二维半导体、混合维度或全二维异质结作为势垒层,可实现对自旋输运的精准调控. 石墨烯^[13]、六方氮化硼 (h-BN)^[14]及过渡金属硫属化合物 (TMDCs)^[15,16]等材料凭借原子级平整的界面展现出良好的应用潜力. 特别是磁性范德华势垒体系,不仅能够产生显著的自旋过滤效应,而且其界面耦合和外场响应对隧穿磁阻行为具有重要调制作用^[17]. 已有研究还表明,在范德华磁性隧道结中可以实现较大的隧穿磁阻和近乎完美的自旋过滤效应,进一步凸显了低维势垒材料在高性能 MTJs 中的应用前景^[18]. 以 CrI_3 ^[19]为代表的本征二维磁性绝缘体具有天然的自旋过滤特性,被认为是理想的势垒材料. 然而,此类材料普遍存在居里温度 (T_c) 较低及环境稳定性差等缺陷,限制了其走向实用化.

在此背景下,一维 (1D) 磁性材料^[20]凭借更为显著的量子限域效应^[21]、独

特的边缘态^[22]及更高的集成潜力^[23]，逐渐成为研究焦点^[24,25]。2021年，Li等^[26]报道了准一维 VS₄ 纳米线展现出约 2.65 eV 的带隙及高达约 210 K 的奈尔温度 (T_N)，显著优于多数低维磁体。随后研究发现，通过载流子掺杂可诱导其发生半金属铁磁转变^[27]，实现 100% 自旋极化。同年，Xun 等^[28]基于蒙特卡罗模拟证实，一维 CrSbSe₃ 原子链的居里温度高达 170 K，远高于其体相材料的 50 K。这一结果有力地表明，降维策略能够通过电子局域化驱动的磁交换耦合强化，以及由晶体对称性破缺引发的磁各向异性增强，进而显著提升体系的磁有序稳定性。此外，一维锯齿型 GdX₂ ($X = \text{Cl}, \text{Br}$) 纳米带^[29]也被证实具有强磁各向异性。这些进展表明，一维磁性体系是构建超微型自旋电子器件的理想平台。相较于二维磁性势垒材料，一维磁性半导体在量子输运中的势垒宽度、局域磁序和电子态耦合等方面具有更灵活的调控自由度，因此有望在实现高效自旋过滤和增强自旋依赖输运响应方面展现独特优势。与此同时，国内关于低维磁性隧道结的研究也已从二维界面调控逐步拓展到分子尺度器件设计和自旋输运性质探索^[30]，为开展一维原子链磁性隧道结研究提供了有益借鉴。

在众多的 1D 候选材料中，一维 MoI₃ 因其优异的可制备性脱颖而出。Choi 等^[31,32]已成功合成纳米级 MoI₃ 晶体，并证实其为带隙约 1.27 eV 的半导体；Kargar 等^[33]确认了其一维链状范德华结构及良好的机械剥离特性。理论预测表明，MoI₃ 具有沿链方向交替排列且链间呈螺旋状有序的反铁磁基态，并表现出易面各向异性^[34]。然而，关于 MoI₃ 原子链在量子输运器件，尤其是作为隧道势垒层时的自旋极化特性，目前仍缺乏系统研究。

本研究构建了一种基于一维 MoI₃ 单原子链的新型磁性隧道结，采用掺杂半

导体作为电极，通过第一性原理量子输运模拟系统研究了其自旋相关输运机制。计算结果表明，该器件在不同散射区长度下均能在低偏压下实现高达 10⁷% 的巨隧穿磁阻比率。同时，体系在特定磁化构型下表现出近乎完美的自旋过滤效应。进一步研究发现，通过操控 MoI₃ 链内局域自旋极化取向，可实现对输运特性的有效调制。本工作不仅阐明了一维磁性半导体隧道结的物理机制，也为开发高集成度、低功耗的自旋电子器件提供了重要的理论支撑。

2 计算方法与模型

本文的结构优化、电子能带结构计算均基于密度泛函理论（DFT），并在 Vienna *Ab initio* Simulation Package（VASP）^[35] 软件包中实现。电子与离子间的相互作用采用投影缀加波（PAW）方法^[36]描述，交换关联势采用 Perdew-Burke-Ernzerhof (PBE) 形式的广义梯度近似（GGA）^[37,38]。为确保计算精度，平面波基组的截断能设置为 500 eV。布里渊区（BZ）采样采用以 Γ 为中心 10 \times 1 \times 1 的 Monkhorst-Pack k 点网格^[39]。几何优化过程中，总能量和原子力的收敛标准分别设为 10⁻⁵ eV 和 0.01 eV/Å。受一维空间限域效应影响，Mo 原子的 4d 电子波函数在垂直于原子链方向上的空间局域化显著增强。为准确描述由此引发的局域电子强关联效应，本文采用了 GGA+ U 方法^[40]。基于前期研究结果，计算中将有效 Hubbard 参数 U_{eff} 设定为 0.6 eV^[41]。此外，为消除周期性边界条件下的层间相互作用，在垂直于原子链的方向设置了 15 Å 的真空层。

器件的自旋极化输运性质通过结合非平衡格林函数（NEGF）与密度泛函理论（DFT）的方法^[42]，在 NANODCAL 软件^[43]中计算实现。在此框架下，交换关联能采用 GGA-PBE 泛函，电子波函数由双 ζ 极化（DZP）原子轨道基组扩展。采

用标准的非定域范数守恒赝势 (Norm-conserving Pseudopotentials) [44] 描述离子实与价电子间的相互作用。在自洽场计算中, 能量截断半径设为 80 Hartree, 哈密顿矩阵的收敛精度设为 10^{-4} eV。计算电流及透射系数时, 费米分布函数的电子温度设定为 300 K。电极区域和中心散射区域的布里渊区 k 空间采样分别设定为 $1 \times 1 \times 100$ 和 $1 \times 1 \times 1$ 。

由于本研究设计的器件中心区域长度 (约 5 nm) 远小于电子的平均自由程, 其输运过程可视为弹道输运。自旋极化电流 I_σ 依据 Landauer-Büttiker 公式 [45,46] 计算:

$$I_\sigma = \frac{e}{h} \int T_\sigma(E) [f_L(E) - f_R(E)] dE \quad (1)$$

其中, σ 表示自旋指数 (\uparrow, \downarrow), e 是电子电荷, h 表示普朗克常数, $T_\sigma(E)$ 表示自旋分辨透射系数, $f_{L(R)}(E)$ 是左 (右) 电极的费米-狄拉克分布函数。器件的隧穿磁阻率 (TMR) 及自旋注入效率 (SIE) 定义如下:

$$\text{TMR} = \left| \frac{I_{\text{PC}} - I_{\text{APC}}}{I_{\text{APC}}} \right| \quad (2)$$

$$\text{SIE} = \left| \frac{I_\uparrow - I_\downarrow}{I_\uparrow + I_\downarrow} \right| \quad (3)$$

3 结果与讨论

3.1 MoI₃ 原子链结构特性及电子能带

一维 MoI₃ 单链的晶体结构如图 1(a) 所示。块体 MoI₃ 具有 RuBr₃ 型结构, 空间群为 Pmmn, 属于正交晶系 [47]。在其基本单元中, 每个 Mo 原子被六个碘原子包围, 形成共享侧边的八面体配位结构。这些八面体单元沿 a 轴 (本文定义为输运方向 z 轴) 延伸形成准一维链状构造。由于 Mo 原子的八面体配位环境, 该体

系在纵向展现出显著的电子结构各向异性^[34,48], 其磁有序性主要源于八面体中心 Mo 原子的 d 轨道相互作用.

计算结果表明, 一维 MoI_3 展现出明显的二聚化 (Dimerization) 特征, 即相邻 Mo-Mo 原子间距呈现长短交替分布^[41]. 这种现象归因于一维系统典型的 Peierls 不稳定性^[49]. 以反铁磁 (AFM) 基态为例, 优化后的 Mo-Mo 间距分别为 2.99 和 3.58 Å. 研究发现, 晶格常数及 Mo-Mo 距离随卤素原子半径的增大而增加, 这一趋势与实验观测值保持高度一致^[41].

基于 GGA+U 方法计算得到的 MoI_3 单链能带结构如图 1(c)和(d)所示. 结果表明, 磁有序态对体系的输运间隙具有显著的调制作用: 铁磁 (FM) 态表现为间接带隙半导体, 带隙值约为 1.06 eV. 而在 AFM 态下, MoI_3 表现为直接带隙半导体, 带隙拓宽至 1.73 eV. 这种随磁化构型显著变化的电子结构, 预示着 MoI_3 单链在不同磁状态下具有迥异的散射势垒. 适中的带隙不仅有效地抑制了热激发引起的漏电流, 还赋予了其作为自旋极化量子输运沟道材料的巨大潜力, 有望在低维自旋器件中诱导产生独特的输运行为.

表 1 详细汇总了 MoI_3 单链在 FM 和 AFM 磁序下的晶格常数 a , 相邻 Mo-Mo 键长, 键长比以及体系总能量. 根据能量极小化原理, 计算结果显示 AFM 态的总能量明显低于 FM 态, 这表明一维 MoI_3 单链在基态下倾向于以反铁磁序稳定存在. 此外, 在两种磁态下均观察到了显著的 Mo-Mo 键长差异, 其键长比进一步定量描述了该体系的二聚化程度. 这种磁序驱动的结构微调与电子关联效应密切相关, 为后续研究其在磁性隧道结中的自旋输运特性奠定了结构基础.

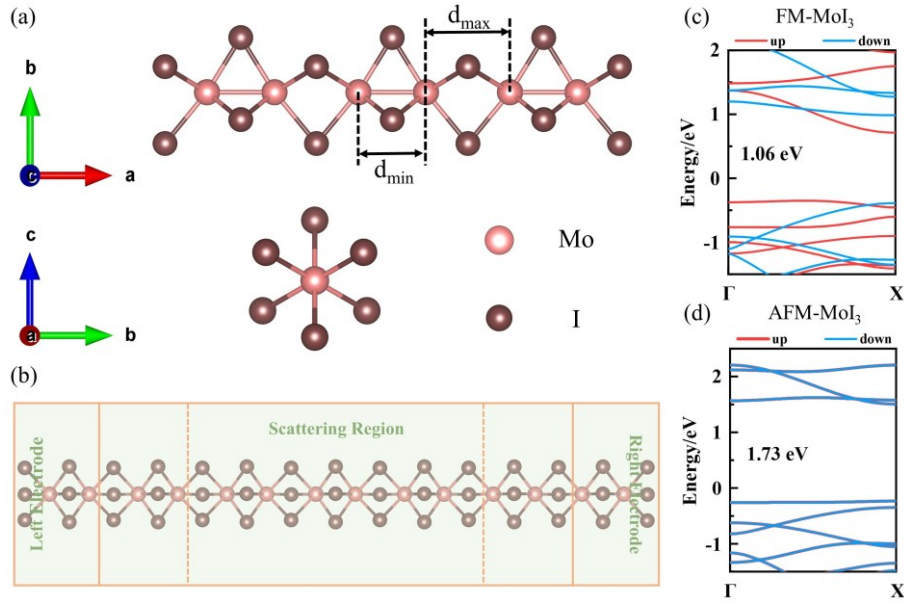


图 1 (a) 一维 MoI_3 原子链的晶体结构示意图；(b) 基于一维 MoI_3 的自旋极化量子输运器件模型；(c) 铁磁 (FM) 态与 (d) 反铁磁 (AFM) 态下 MoI_3 单链的电子能带结构

Fig. 1. (a) Schematic crystal structure of the 1D MoI_3 atomic chain. (b) Structural model of the spin-polarized quantum transport device based on the 1D MoI_3 scattering region with doped MoI_3 electrodes. Electronic band structures of the MoI_3 chain in the (c) ferromagnetic (FM) and (d) antiferromagnetic (AFM) states.

表 1 一维 MoI_3 铁磁 (FM) 与反铁磁 (AFM) 态下的几何参数与能量稳定性。表中列出了晶格常数 a 、相邻 Mo-Mo 键长 (d_{\min} , d_{\max})、二聚化键长比 (d_{\min}/d_{\max}) 及两种磁态的相对能量 ΔE 。

Table 1. Geometric parameters and energy stability of the 1D MoI_3 atomic chain in ferromagnetic (FM) and antiferromagnetic (AFM) states. Listed are the lattice constant (a), adjacent Mo-Mo bond lengths (d_{\min} , d_{\max}), dimerization bond length ratio (d_{\min}/d_{\max}), and relative energy (ΔE) between two magnetic states.

	State	$a(\text{\AA})$	$d_{\min}(\text{\AA})$	$d_{\max}(\text{\AA})$	d_{\min}/d_{\max}	$\Delta E(\text{eV})$
MoI_3	FM	6.49	2.89	3.60	0.80	0.15
	AFM	6.56	2.99	3.58	0.84	0

3.2 器件结构的自旋极化量子输运性能

图 1(b)展示了用于研究一维 MoI_3 单链的自旋输运器件模型^[50-52]。该器件由左/右电极 (源极/漏极) 和中心散射区组成。电极采用掺杂浓度为 1% 的 MoI_3 单胞, 每个电极包含四层原子。如图 S1 所示, 1% 掺杂的 MoI_3 成功转变为一种理

想的半金属 (Half-metal), 在费米能级处实现了 100% 的自旋极化. 从器件设计的角度看, 采用这种半金属作为电极, 能够为量子输运提供极其纯净、单向自旋的载流子源. 为模拟实验中的扫描隧道显微镜 (STM) 针尖或接触点, 在电极末端附着单个 Mo 原子作为尖端. 值得一提的是, 当尖端原子由过渡金属 Mo 替换为卤族 I 后, 器件在平行 (PC) 与反平行 (APC) 构型下的自旋分辨电流 (I-V) 仍表现出高度一致的变化趋势, 且占主导地位的上自旋电流在数量级上基本重合 (图 S2). 我们系统考察了不同散射区长度 (以 Mo 原子数 $N=6, 8, 10, 12$ 定义) 下, 器件在平行 (PC) 与反平行 (APC) 磁化排布下的输运特性.

研究发现, 散射区长度对器件的开关性能具有显著影响. 如图 2(a) 所示, 不同长度下的 MoI_3 器件展现出一致的隧穿磁阻 (TMR) 变化规律: 在 $V=0.1\text{ V}$ 的低偏压下, TMR 达到峰值. 随着通道长度 N 从 6 增加到 12, TMR 值由 $8.47 \times 10^6\%$ 跃升至 $2.05 \times 10^7\%$, 表明该体系具有极其卓越的磁灵敏度. TMR 随偏压增大呈反比下降趋势. 当偏压达到 0.6 V 时, APC 电流反超 PC 电流, 引起 TMR 骤降.

在自旋极化性能方面, 如图 2(b) 所示, MoI_3 器件表现出近乎完美的自旋注入效率 (SIE). 在所有讨论的长度范围内, SIE 始终保持在 100%, 证实了其极强的自旋过滤稳定性. 为抑制短沟道效应并深入挖掘应用潜力, 后续分析重点聚焦于 $N=12$ 的器件模型. 图 2(c-f) 给出了不同长度器件的自旋分辨 I-V 曲线. 在两种磁化状态下, 上自旋 (Spin-up) 电流均随偏压增加而单调上升 (除 0.6 V 附近的突变外). 在 PC 态下, 上自旋电流可达微安 (μA) 量级, 而 APC 态则被抑制在 $10^{-6}\ \mu\text{A}$ 左右. 显著的电流差值表明体系导通主要受上自旋通道支配, 其自旋极化度极高.

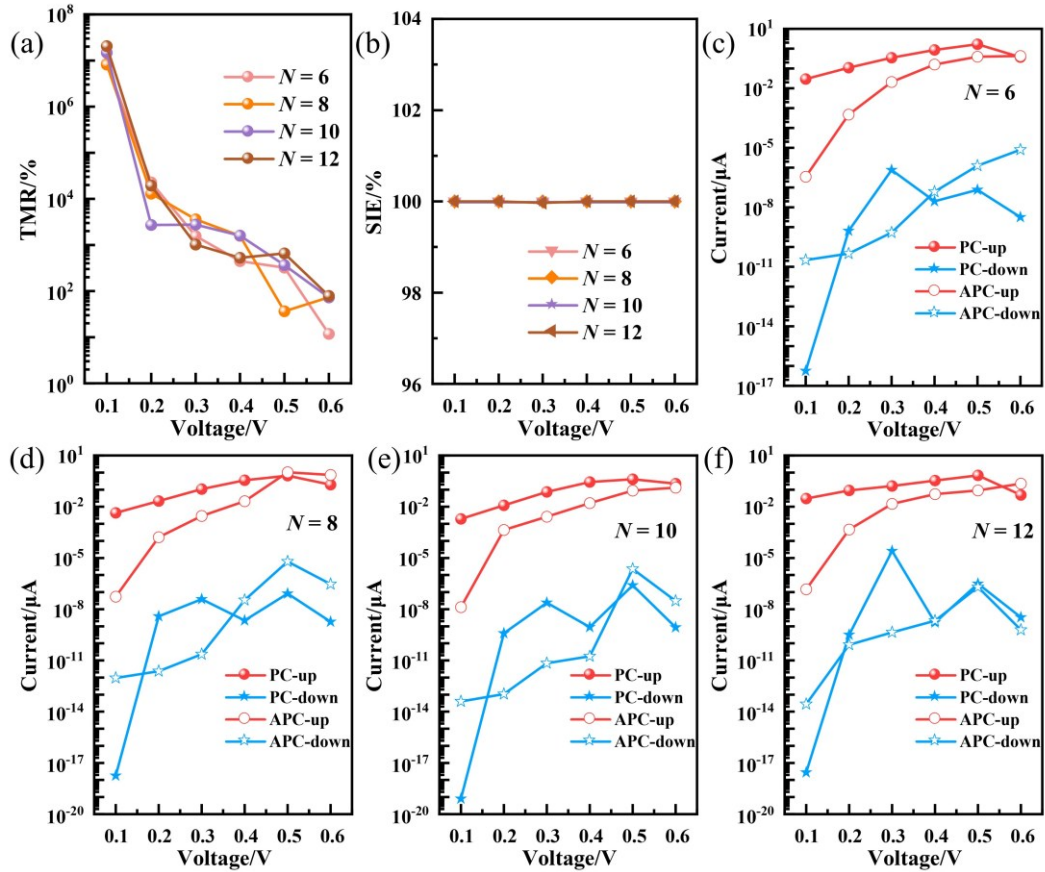


图 2 不同散射区长度 ($N = 6, 8, 10, 12$) 下 MoI₃ 器件的运输性能: (a) 随偏压变化的隧穿磁阻率 (TMR); (b) 自旋注入效率 (SIE); (c-f) 分别对应 $N = 6, 8, 10, 12$ 时, 在平行 (PC) 与反平行 (APC) 磁化排布下的自旋分辨伏安特性曲线 (I-V)

Fig. 2. Transport performance of MoI₃ devices with varying scattering region lengths ($N = 6, 8, 10, 12$): (a) Tunneling magnetoresistance (TMR) ratio as a function of bias voltage; (b) Spin injection efficiency (SIE); (c-f) Spin-resolved current-voltage (I-V) characteristics under parallel (PC) and anti-parallel (APC) configurations for $N = 6, 8, 10, 12$, respectively.

基于图 3 的自旋分辨透射谱 $T(E)$ 可以从微观层面定量阐明上述运输特性的物理起源. 在平衡态 ($V = 0 \text{ V}$) 下: PC 构型在费米能级 (E_F) 附近存在显著的透射峰, 且几乎完全由上自旋态贡献, 直接印证了体系极强的自旋选择性. 相反, APC 构型在 E_F 处表现出零透射的宽禁带特征, 仅在 $E - E_F > 0.75 \text{ eV}$ 的高能区才出现自旋简并的透射带. 在非平衡条件下, 偏压窗口 (见图 3 绿色虚线区域) 随电压增大而展宽. PC 态下的上自旋透射系数在窗口内稳定增加, 驱动电流上升. 在此过程中, 下自旋通道的透射谱在整个偏压范围内始终被有效压制在窗口

之外，从而使器件维持了 100% 的 SIE.

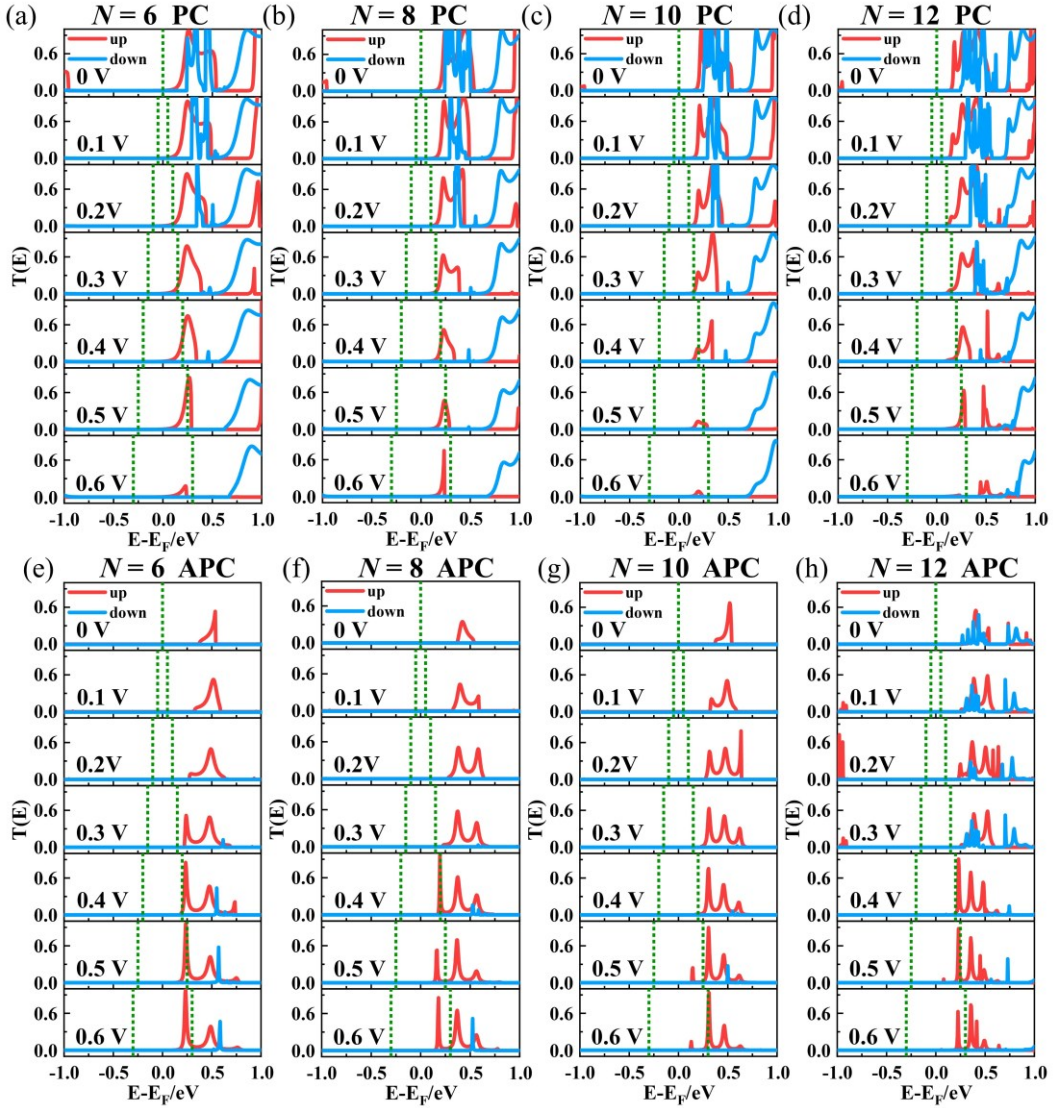


图 3 不同散射区长度下 MoI_3 器件在平衡态与非平衡态下的自旋分辨透射谱 $T(E)$: (a-d) 分别对应 $N = 6, 8, 10, 12$ 长度下的平行 (PC) 磁化构型; (e-h) 分别对应 $N = 6, 8, 10, 12$ 长度下的反平行 (APC) 磁化构型. 图中展示了费米能级 E_F 附近的自旋通道分布情况.

Fig. 3. Spin-resolved transmission spectra $T(E)$ of MoI_3 under equilibrium and non-equilibrium conditions for varying scattering region lengths: (a-d) parallel (PC) configuration for $N = 6, 8, 10, 12$; (e-h) anti-parallel (APC) configuration for $N = 6, 8, 10, 12$. The spectra illustrate the evolution of transmission channels near the Fermi level E_F .

为揭示 TMR 随偏压急剧衰减的微观物理机制，我们进一步分析了高偏压下透射函数在偏压窗口内的积分演化行为. 研究表明，在 PC 构型下，尽管偏压窗口不断拓宽，但强电场诱导的能级位移与失配导致系统偏离了低偏压下的共振隧

穿条件。这使得 E_F 附近透射窗口内的上自旋有效透射峰整体减弱，主导自旋通道的运输贡献趋于饱和，导致电流增速明显放缓；与之形成鲜明对比的是，在 APC 构型下，电场驱动势垒区能带发生相对位移，促使越来越多原本位于偏压窗口之外的上自旋态逐渐进入运输窗口。大量新透射通道的开启使得偏压窗口内的透射积分强度显著跃升，进而驱动 APC 态电流急剧增大。这种偏压驱动下 PC 构型相干通道的饱和与 APC 构型新杂化通道的开启（图 S3），急剧削弱了两种磁化构型间的非对称运输差异，最终导致 TMR 在高偏压区域产生显著下降。

局域态密度（LDOS）沿运输方向（ z 轴）的空间演化规律，为深入理解器件自旋极化运输的微观机制提供了清晰的物理图像。如图 4 所示，在平行（PC）与反平行（APC）构型下，费米能级（ E_F ）附近的电子态分布呈现出极强的自旋不对称性。与下自旋分量（图 4(e-h)）相比，上自旋分量（图 4(a-d)）在 E_F 周围表现出空间连续的态密度分布，构成了畅通的相干运输网络。相反，下自旋通道在该能区呈现显著的态密度耗尽特征。这一强烈的能带选择性表明， E_F 附近主导量子运输的载流子几乎完全源自上自旋通道，从微观层面诠释了器件卓越的自旋过滤效应。进一步对比平衡态（ $V=0\text{ V}$ ）与非平衡态（ $V=0.5\text{ V}$ ）的结果发现，外加偏压电场会对 E_F 及其邻近能区的 LDOS 产生显著调制作用，促使偏压窗口内的上自旋态在空间分布上发生重排。这种空间重排有效地开启并展宽了上自旋运输通道，从而增强了中心散射区的导通性。与此同时，下自旋在 E_F 附近依然维持较低的态密度，进一步证实了外加偏压主要驱动并影响上自旋通道的相干运输。

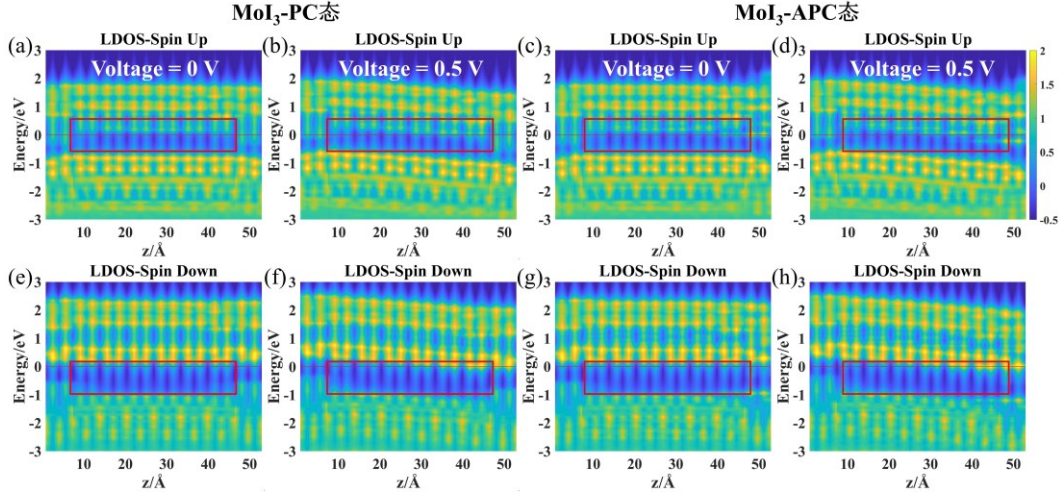


图 4 $N = 12$ 的 MoI_3 器件在不同偏压下的自旋分辨局域态密度 (LDOS): (a-d) 平行 (PC) 与反平行 (APC) 构型下自旋向上 (Spin-up) 分量的分布, 对应偏压分别为 0 V 和 0.5 V; (e-h) 对应的自旋向下 (Spin-down) 分量的分布. 图中黄色与蓝色区域分别代表高、低局域态密度.

Fig. 4. Spin-resolved local density of states (LDOS) for the $N = 12$ MoI_3 system under varying bias voltages: (a-d) Spin-up components in PC and APC configurations at $V = 0$ V and 0.5 V; (e-h) the corresponding spin-down components. The yellow and blue regions represent high and low local state densities, respectively.

3.3 局域自旋极化取向的调制效应

为了探索局域磁序对输运特性的调控能力, 我们将中心散射区按每两个 Mo 原子的长度划分为一个独立位点, 自左向右依次编号为 Sites 1-6 (见图 5). 本征铁磁 (FM) 态定义为所有位点的磁矩方向均平行向上. 基于链的空间对称性, 我们选择了四个具有代表性的调控位置: 靠近左电极的 AC1、中心区域的 AC3 与 AC4、以及靠近右电极的 AC6. 通过将选定位置的磁矩方向由向上翻转为向下, 我们系统研究了局域自旋翻转对自旋相关输运行为的影响.

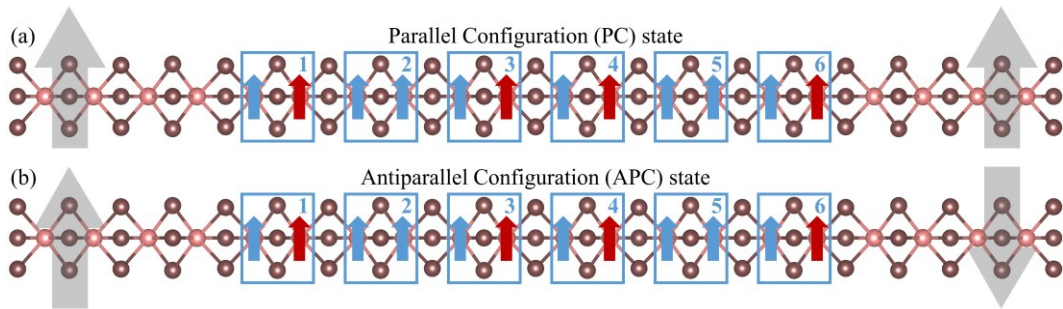


图 5 一维 MoI_3 原子链中局域自旋极化调控的结构示意图：(a) 平行 (PC) 磁化构型；(b) 反平行 (APC) 磁化构型。图中数字 1-6 标记了中心散射区内可进行磁矩翻转操作的代表性原子位点。

Fig. 5. Schematic illustration of local spin polarization manipulation in the 1D MoI_3 atomic chain: (a) parallel (PC) configuration; (b) anti-parallel (APC) configuration. The numbers 1-6 denote the representative atomic sites within the central scattering region for spin-flip operations.

图 6(a)和(b)的伏安特性曲线表明，局域磁矩翻转对 MoI_3 的自旋分辨输运具有显著的位点依赖性 (Site-dependent)。在 PC 和 APC 态下，其表现出相似的演化规律：相比于本征态 (AC0)，翻转任一位点的自旋都会一致地抑制上自旋电流。这种现象在中心位点 AC3 和 AC4 处最为剧烈，电流在 0.1-0.6 V 范围内下降了约 2-3 个数量级。这归因于局域自旋翻转引入了强烈的散射中心，破坏了一维链中自旋极化载流子的相干输运。靠近电极的位点影响较小，其中 AC6 位点在高偏压下甚至表现出电流的反常增强。尽管电流大小发生改变，但上下自旋电流的极化差仍维持在 7 个数量级以上，确保了优异的自旋过滤性能。在 AC6 位置操控下，器件在宽偏压范围内仍能保持 $10^3\%$ 以上的高 TMR 比率。

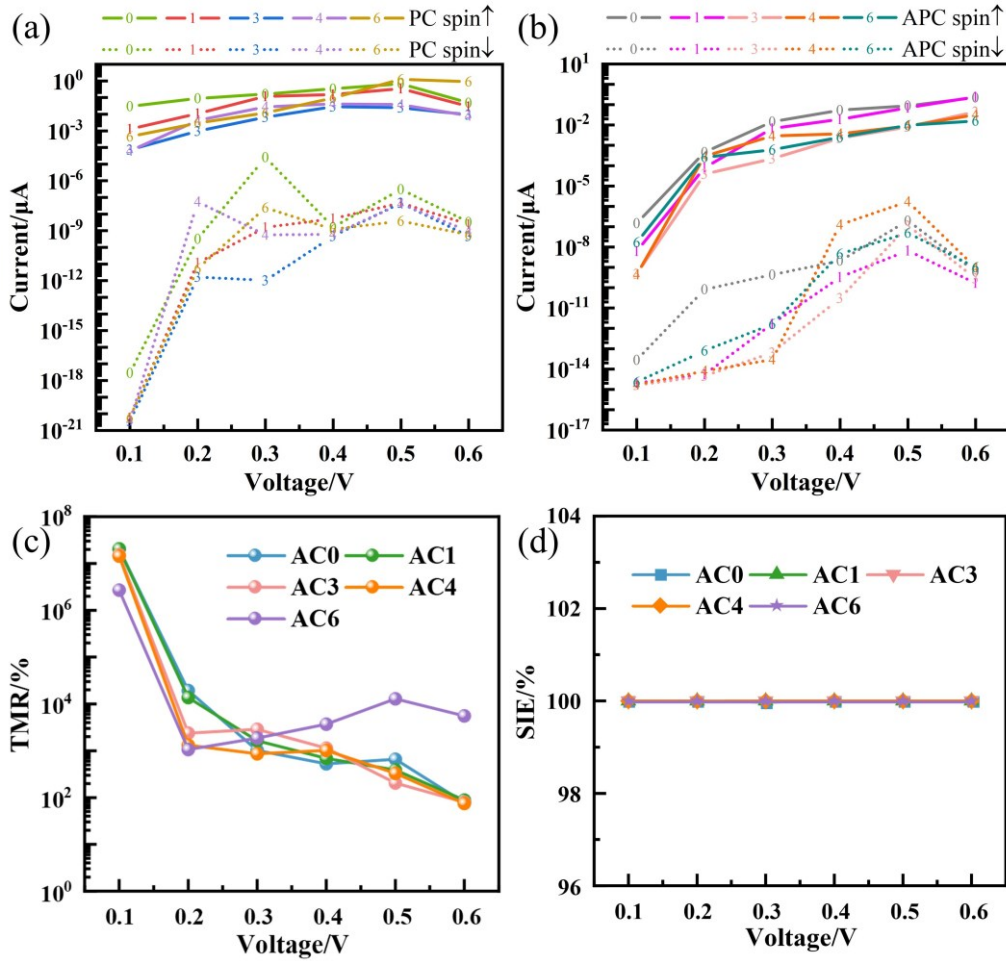


图 6 局域自旋调控后 $N = 12$ 的 MoI_3 器件输运特性: (a) 平行 (PC) 态与 (b) 反平行 (APC) 态下的自旋分辨伏安特性 (I-V) 曲线; (c) 隧穿磁阻 (TMR) 比率与 (d) 自旋注入效率 (SIE) 随偏压的变化关系。

Fig. 6. Transport properties of the $N = 12$ MoI_3 device after local spin manipulation: Spin-resolved current-voltage (I-V) characteristics in the (a) parallel (PC) and (b) anti-parallel (APC) states; (c) Tunneling magnetoresistance (TMR) ratio and (d) spin injection efficiency (SIE) as a function of bias voltage.

图 7 给出了局域自旋调控后的透射谱, 其演化趋势与前述 I-V 特性高度吻合. 在 PC 态 (图 7(a-d))中, 翻转 AC1、AC3、AC4 或 AC6 位置的磁矩对偏压窗口内的整体谱形状仅产生微扰. 这表明在平行构型下, 局域自旋反转并未从根本上阻断主要的自旋主导输运路径 (Spin-dominant transport pathways). 然而, 精细结构分析显示, 中心区 AC3 与 AC4 的自旋翻转导致偏压窗口内的上自旋透射系数显著坍塌 (图 7(b, c)). 这是因为中心位点的磁矩反转引入了强烈的自旋选择性

散射 (Spin-selective scattering), 极大地抑制了上自旋通道的相干传输. 在 APC 态 (图 7(e-h))中, 调控效应表现出更强的空域敏感性. AC3 处的磁矩反转导致偏压窗口内的透射峰几乎完全消失 (图 7(f)), 表现为极强的自旋阻挡效应. 相比之下, 靠近电极的 AC1 位点翻转后, 透射峰仅略有削减 (图 7(e)); 而 AC4 和 AC6 位点的翻转则导致透射强度明显衰减 (图 7(g, h)). 这些透射特征与观测到的电流变化趋势精确对应. 综上所述, 透射谱的演变特征清晰地揭示了自旋输运受控于特定位点的磁环境以及费米能级附近态密度 (DOS) 的可调控性, 展现了该体系在原子尺度上定制自旋流的巨大潜力.

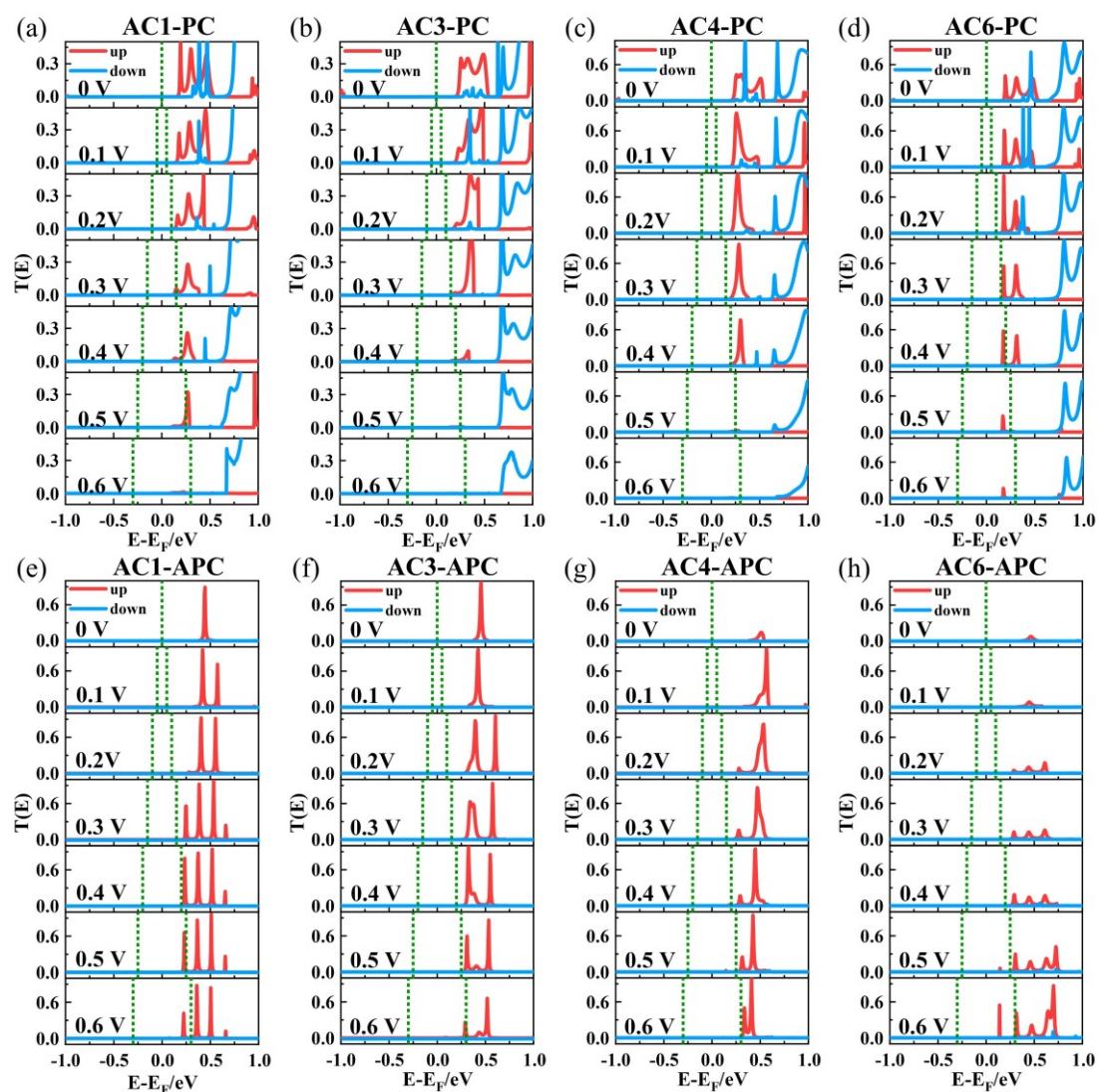


图 7 局域自旋调控后 $N = 12$ 的 MoI_3 器件在平衡与非平衡态下的自旋分辨透射谱：(a-d) 平行 (PC) 态下，分别于 AC1、AC3、AC4 和 AC6 位点进行磁矩翻转；(e-h) 反平行 (APC) 态下，分别于 AC1、AC3、AC4 和 AC6 位点进行磁矩翻转。

Fig. 7. Spin-resolved transmission spectra under equilibrium and non-equilibrium conditions for the $N = 12$ MoI_3 device following local spin manipulation: (a-d) parallel (PC) state and (e-h) anti-parallel (APC) state with spin-flip operations at the AC1, AC3, AC4, and AC6 sites, respectively.

对自旋翻转后 PC 态下的 LDOS 进行比较分析，进一步阐明了输运行为对位点依赖性电子结构的敏感性 (图 8)。对于处于中心位置、不直接与电极接触的 AC3 和 AC4 位点，局部自旋反转显著重塑了局域电子结构：原本处于费米能级附近的上自旋未占态被推向 E_F 上方约 0.4 eV (图 8(b, c))，而占据的下自旋态则大幅下移至 -1 eV 附近 (图 8(f, g))。由于这些位点位于原子链深处，其与电极间的电子耦合较弱，导致界面 LDOS 在空间分布上出现“中心截断”现象。这种能级偏移使得上自旋电子在传输路径中遭遇显著的局域势垒 (Local potential barrier)，从而造成电流大幅衰减。与之形成鲜明对比的是，AC1 和 AC6 位点直接与掺杂电极成键。较强的界面杂化作用使得这里的自旋翻转仅微弱地扰动了局域电子结构，界面 LDOS 保持了较好的连续性，并未产生明显的传输阻碍。因此，在这些位置进行自旋操控时，电流仅表现出适度降低。总体而言，LDOS 分析证实，一维器件的输运响应不仅取决于磁序分布，还高度受控于原子位点与电极界面的耦合强度。这一发现为在原子尺度上优化自旋电子器件性能提供了深刻的物理洞察。

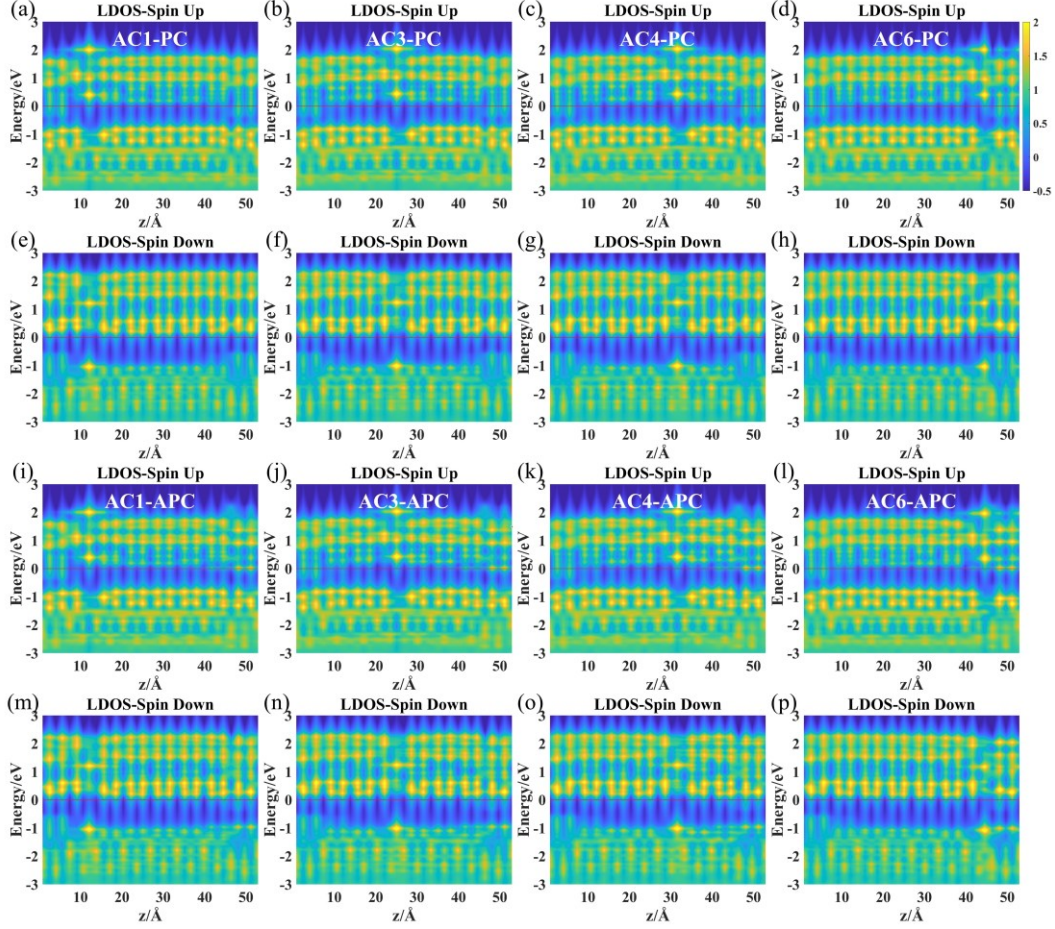


图 8 在特定原子位点进行局域自旋调控后， $N = 12$ 的 MoI_3 体系的自旋分辨局域态密度 (LDOS): (a-d) 平行 (PC) 态下，分别于 AC1、AC3、AC4 和 AC6 位点进行磁矩翻转时的自旋向上 (Spin-up) 分量，以及(e-h)对应的自旋向下 (Spin-down) 分量；(i-l) 反平行 (APC) 态下，于相同位点调控时的自旋向上分量，以及(m-p)对应的自旋向下分量。

Fig. 8. Spin-resolved local density of states (LDOS) of the $N = 12$ MoI_3 system following local spin manipulation at specific atomic sites: (a-d) Spin-up and (e-h) corresponding spin-down components in the parallel (PC) state with spin-flip operations at the AC1, AC3, AC4, and AC6 sites, respectively; (i-l) Spin-up and (m-p) corresponding spin-down components in the anti-parallel (APC) state under the same local manipulations.

4 结论

综上所述，本文基于第一性原理量子输运模拟，系统研究了以一维 MoI_3 原子链为隧道势垒的新型磁性隧道结 (MTJs) 中的自旋相关运输机制。研究表明，该原子尺度异质结展现出卓越的自旋电子学性能：在低偏压下可实现高达 $10^7\%$ 的巨隧穿磁阻 (TMR) 比率，并具备完美 (100%) 的自旋过滤效应。此外，我

们证实了通过操控局域自旋极化取向,能够高效且精准地调制一维磁性半导体的电子输运行为.特别是在特定原子位点(如 AC6 界面位置)实施局域磁矩翻转时,器件在宽偏压范围内依然能维持超过 $10^3\%$ 的 TMR 比率,突显了该磁性基态体系在自旋调控上的鲁棒性与极高的灵活性.本研究揭示的原子尺度可调谐性及其潜在的拓扑电子学特性,不仅深化了对一维自旋输运及交换耦合机制的理解,更为开发超紧凑、低功耗及可重构的新型逻辑与存储器件提供了关键的材料设计思路,有望推动基于自旋的信息处理技术向更高性能与功能集成度迈进.

参考文献

- [1] Hirohata A, Takanashi K 2014 *J. Phys. D: Appl. Phys.* **47** 193001
- [2] Wolf S, Awschalom D, Buhrman R, Daughton J, Molnár S, Roukes M, Chtchelkanova A Y, Treger D 2001 *Science* **294** 1488
- [3] Ćutic I, Fabian J, Sarma S D 2004 *Rev. Mod. Phys.* **76** 323
- [4] Zhang L, Zhou J, Li H, Shen L, Feng Y P 2021 *Appl. Phys. Rev.* **8** 021308
- [5] Zhao M Q, Chen A T, Liu E L, Zhao L, Wang S S, He S K, Zhang X X, Jiang W J 2025 *Chin. Phys. Lett.* **42** 047502
- [6] Zhu J-G J, Park C 2006 *Mater. Today* **9** 36
- [7] Ikeda S, Hayakawa J, Lee Y M, Matsukura F, Ohno Y, Hanyu T, Ohno H 2007 *IEEE Trans. Electron Devices* **54** 991
- [8] Chen M B, Li K K, Yang X L, Peng X, Li W D, Liu E L, Wu H Z, He S K 2024 *Chin. Phys. B* **33** 128502

- [9] Zhao Y Q, Zuo H Y, Li S W, Xia K, Wen M, Guo J M, Xiong P, Ren C 2024 *Chin. Phys. Lett.* **41** 117201
- [10] Li Y B, Wei F L, Yang Z 2009 *Physics* **38** 420 (in Chinese) [李彦波, 魏福林, 杨正 2009 物理 **38** 420]
- [11] Xiang G, Ren H 2024 *Nanomater* **14** 1139
- [12] Piquemal-Banci M, Galceran R, Martin M-B, Godel F, Anane A, Petroff F, Dlubak B, Seneor P 2017 *J. Phys. D: Appl. Phys.* **50** 203002
- [13] Zhang G, Wu H, Yang L, Jin W, Zhang W, Chang H 2024 *Appl. Phys. Rev.* **11**
- [14] Mondinos N, Altarawneh M, Amri A, Liew W Y H, Poinern G E J, Jiang Z-T 2023 *RSC Adv.* **13** 30346
- [15] Pawar R, Sangolkar A A 2021 *Comput. Theor. Chem.* **1204** 113417
- [16] Liu J, Liang P, Shu H B, Shen T, Xing S, Wu Q 2014 *Acta Phys. Sin.* **63** 117101 (in Chinese) [刘俊, 梁培, 舒海波, 沈涛, 邢淞, 吴琼 2014 物理学报 **63** 117101]
- [17] Fan Y J, Zhang R, Chen Y, Cai X H 2024 *Acta Phys. Sin.* **73** 137302 (in Chinese) [樊译韵, 张阮, 陈宇, 蔡星汉 2024 物理学报 **73** 137302]
- [18] Dong X L, Shi X W, Qiao D, Li Z Y, Bai Y H, Qiao Z H, Xu X H 2024 *Chin. Phys. Lett.* **41** 107501
- [19] Liu L, Huang M, Jiao L 2026 *J Phys. Condens. Mat.* **38** 055802
- [20] Zhan P, He P, Wang Z, Luo L, Cui X, Zheng J 2025 *Sci. China Mater.* **68** 364-386
- [21] Tian C, Miao W, Zhao L, Wang J 2023 *Rev. Phys.* **10** 100082
- [22] Brede J, Merino-Díez N, Berdonces-Layunta A, Sanz S, Domínguez-Celorrio A,

- Lobo-Checa J, Vilas-Varela M, Peña D, Frederiksen T, Pascual J I, de Oteyza D G, Serrate D 2023 *Nat. Commun.* **14** 6677
- [23] Zhang J, Ghawri B, Dutta D, Fasel R, Calame M, Borin Barin G, Perrin M L 2026 *Nat. Rev. Mater.* **11** 194-212
- [24] Chang J, Chen J 2022 *Acta Phys. Sin.* **71** 126101 (in Chinese) [常静, 陈基 2022 物理学报 **71** 126101]
- [25] Balandin A A, Kargar F, Salguero T T, Lake R K 2022 *Mater. Today* **55** 74-91
- [26] Li S, He J, Nachtigall P, Grajciar L, Brivio F 2021 *J. Mater. Chem. C* **9** 3122
- [27] Yan K, Cheng L, Hu Y, Gao J, Zou X, Chen X 2025 *Phys. Rev. Lett.* **134** 036302
- [28] Xun Y, Zhu Z, Chen X, Qi J 2021 *Phys. Rev. B* **104** 085429
- [29] Xie W, Xu X, Li M, Wang H 2023 *J. Magn. Magn. Mater.* **573** 170662
- [30] Di M Y, Li P L, Fu L, Xu Y J, Li J, Kuang Y F, Hu J F 2025 *Acta Phys. Sin.* **74** 217201 (in Chinese) [邸茂云, 李鹏乐, 付林, 许永杰, 李瑾, 邝亚飞, 胡季帆 2025 物理学报 **74** 217201]
- [31] Choi K H, Oh S, Chae S, Jeong B J, Kim B J, Jeon J, Lee S H, Yoon S O, Woo C, Dong X 2021 *J. Alloy. Compd.* **853** 157375
- [32] McGuire M A, Yan J, Lampen-Kelley P, May A F, Cooper V R, Lindsay L, Puretzy A, Liang L, Kc S, Cakmak E 2017 *Phys. Rev. Mater.* **1** 064001
- [33] Kargar F, Barani Z, Sesing N R, Mai T T, Debnath T, Zhang H, Liu Y, Zhu Y, Ghosh S, Biacchi A J 2022 *Appl. Phys. Lett.* **121** 221901
- [34] Mella A, Suárez-Morell E, Nunez A S 2024 *J. Magn. Magn. Mater.* **594** 171882

- [35]Kresse G, Èller J F 1996 *Phys. Rev. B* **54** 11169
- [36]Blöchl P E 1994 *Phys. Rev. B* **50** 17953
- [37]Perdew J P, Chevary J A, Vosko S H, Jackson K A, Pederson M R, Singh D J, Fiolhais C 1992 *Phys. Rev. B* **46** 6671
- [38]Johnson E R, Becke A D 2005 *J. Chem. Phys.* **123** 024101
- [39]Monkhorst H J, Pack J D 1976 *Phys. Rev. B* **13** 5188
- [40]Liechtenstein A, Anisimov V I, Zaanen J 1995 *Phys. Rev. B* **52** R5467
- [41]Ma X, Lei Y, Bao H, Wu W, Ma F, Li Y 2025 *Phys. Rev. Mater.* **9** 034412
- [42]Taylor J, Guo H, Wang J 2001 *Phys. Rev. B* **63** 121104
- [43]Taylor J, Guo H, Wang J 2001 *Phys. Rev. B* **63** 245407
- [44]Junquera J, Paz O, Sánchez-Portal D, Artacho E 2001 *Phys. Rev. B* **64** 235111
- [45]Meir Y, Wingreen N S 1992 *Phys. Rev. Lett.* **68** 2512
- [46]Lin K-M, Chen P-J, Chuu C-P, Chen Y-C 2024 *Sci Rep* **14** 24019
- [47]Merlino S, Labella L, Marchetti F, Toscani S 2004 *Chem. Mat.* **16** 3895
- [48]Zou J, Li W, Xun Y, Wang H, Qi J 2025 *Phys. Rev. B* **111** 134416
- [49]Perdew J P, Burke K, Ernzerhof M 1996 *Phys. Rev. Lett.* **77** 3865
- [50]Sánchez-Ochoa F 2022 *Phys. Rev. Appl.* **18** 054068
- [51]Kang J, Wu F, Li J 2012 *Appl. Phys. Lett.* **100** 233122
- [52]Kang J, Wu F, Li J 2012 *J. Appl. Phys.* **112** 104328

Giant Tunneling Magnetoresistance and Localized Spin Manipulation in One-Dimensional MoI₃ Atomic Chain Magnetic Tunnel Junctions*

WAN Qian LI Yan[†]

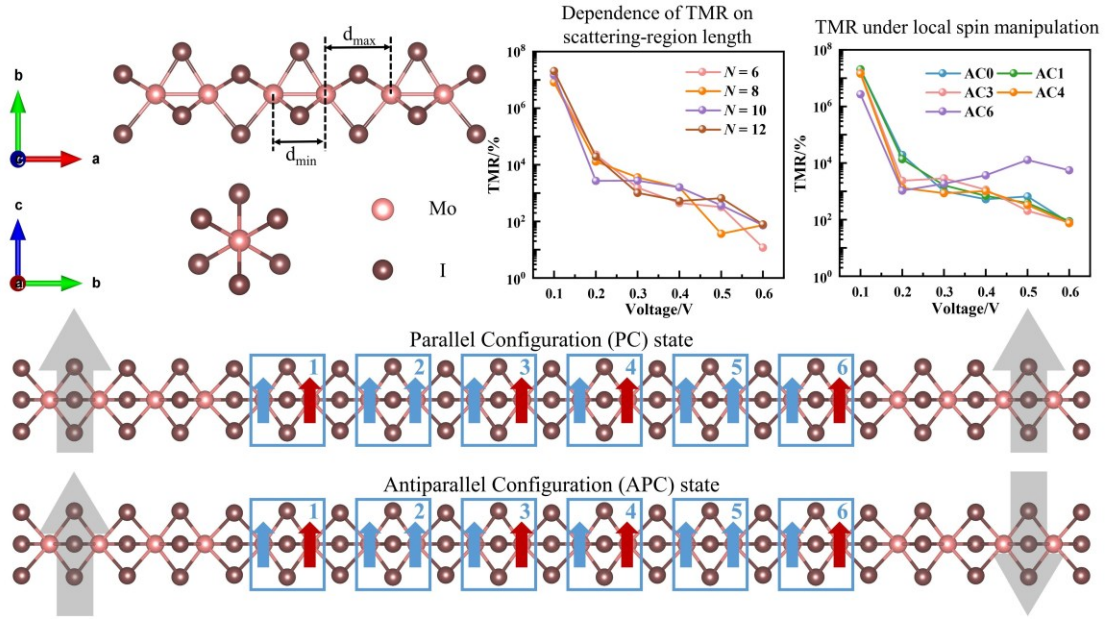
(State Key Laboratory for Mechanical Behavior of Materials, School of Materials Science and Engineering, Xi'an Jiaotong University, Xi'an 710049, China)

Abstract

The exploration of high-performance tunnel barrier materials is a key scientific issue for enhancing the performance of magnetic tunnel junctions (MTJs) devices and advancing the development of spintronics. In recent years, two-dimensional van der Waals materials have attracted extensive attention in tunnel barrier studies because of their atomically flat interfaces, reduced interfacial scattering, and excellent capability for heterogeneous integration. In comparison with two-dimensional systems, however, one-dimensional magnetic semiconductors exhibit more pronounced quantum confinement effects and superior spin tunability, thereby offering unique advantages for achieving efficient spin filtering and enhancing spin-dependent transport responses. These characteristics provide a promising new avenue for the construction of novel low-dimensional spintronic devices. Motivated by these considerations, we propose a new MTJs architecture employing a one-dimensional MoI₃ atomic chain as the tunnel barrier layer. By combining first-principles calculations with the nonequilibrium Green's function method, we systematically investigate the spin-dependent transport properties of this device under different scattering-region lengths and external bias voltages. Through analyses of the current-voltage characteristics, transmission spectra, and spin-polarized transport behavior, the microscopic physical mechanisms underlying its high-performance magnetotransport response are elucidated. The results show that MTJs based on one-dimensional MoI₃ atomic chains exhibit excellent spin transport characteristics for different scattering-

region lengths. Within the low-bias regime, the device can achieve an ultrahigh tunneling magnetoresistance (TMR) ratio of up to approximately $10^7\%$, together with a 100% spin injection efficiency, indicating that this system possesses nearly ideal spin injection capability. This outstanding performance mainly originates from the highly selective suppression of the transmission probabilities for different spin channels by the one-dimensional barrier layer, as well as the pronounced difference in transport channels between the parallel and antiparallel magnetic configurations. Furthermore, the influence of local spin manipulation on the transport properties of the device is investigated. It is found that precise control of local spin-polarization reversal at specific atomic sites, such as the AC6 site, can effectively reconstruct the local electronic-state distribution and thereby significantly modulate the spin transport behavior of the device. Remarkably, under such local regulation, the device can still maintain a TMR ratio exceeding $10^3\%$ over a wide bias range, demonstrating that this system not only exhibits an excellent magnetoresistive response but also possesses strong bias stability and functional robustness.

These results indicate that one-dimensional MoI_3 atomic chains can serve not only as highly efficient tunnel barrier materials in MTJs structures, but also as a versatile platform for flexibly tuning transport performance through local spin engineering. Such features highlight their considerable potential for applications in high-performance nonvolatile spin memory, nanoscale spin logic devices, and low-dimensional quantum spintronics. This work provides a new materials perspective and physical picture for the design of high-performance MTJs based on low-dimensional magnetic systems, and lays a theoretical foundation for the development of next-generation spintronic devices that simultaneously feature high TMR ratios, high spin injection efficiency, and excellent tunability.



Keywords: First-Principles Calculations; One-Dimensional MoI₃; Magnetic Tunnel Junctions (MTJs); Tunneling Magnetoresistance (TMR); Spin-Polarized Transport

PACS: 72.25.Dc, 73.63.Nm, 85.75.-d

* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 12274335)

and the Natural Science Foundation of Shaanxi Province, China (Grant No. 2025QCY-KXJ-147).

These authors contributed equally.

† Corresponding author. liyan0802@xjtu.edu.cn

The first author. wangqian@stu.xjtu.edu.cn

非最终出版稿件，
录用稿件，